EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(1) Anmeldenummer: 91109440.7

2 Anmeldetag: 08.06.91

(5) Int. Cl.5: **C07D** 498/04, C07D 513/04, A01N 43/76, A01N 43/78, A01N 43/80, //(C07D498/04, 261:00,207:00),(C07D498/04, 263:00,207:00),(C07D513/04, 275:00,207:00),(C07D513/04, 277:00,207:00)

3 Priorität: 23.06.90 DE 4020072 16.07.90 DE 4022566

(43) Veröffentlichungstag der Anmeldung: 02.01.92 Patentblatt 92/01

Benannte Vertragsstaaten: AT BE CH DE ES FR GB IT LI NL

(7) Anmelder: BASF Aktiengesellschaft Carl-Bosch-Strasse 38 W-6700 Ludwigshafen(DE)

© Erfinder: Maywald, Volker, Dr. Berner Weg 24 W-6700 Ludwigshafen(DE) Erfinder: Ditrich, Klaus, Dr. Paray-le-Moniai-Strasse 12 W-6702 Bad Duerkheim(DE)

Erfinder: Kuekenhoehner, Thomas, Dr.

Seidelstrasse 2

W-6710 Frankenthal(DE)

Erfinder: Hamprecht, Gerhard, Dr.

Rote-Turm-Strasse 28 W-6940 Weinheim(DE)

Erfinder: Freund, Wolfgang, Dr. Johann-Gottlieb-Fichte-Strasse 71

W-6730 Neustadt(DE)

Erfinder: Westphalen, Karl-Otto, Dr.

Mausbergweg 58 W-6720 Speyer(DE)

Erfinder: Gerber, Matthias, Dr.

Ritterstrasse 3

W-6704 Mutterstadt(DE) Erfinder: Walter, Helmut, Dr. **Gruenstadter Strasse 82** W-6719 Obrigheim 3(DE)

Dicarbonsäureimide.

Dicarbonsäureimide der Formeln la, lb und lc

Ιc

in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

X Sauerstoff oder Schwefel;

R¹ Wasserstoff; Halogen; Cyano; Alkyl; Cycloalkyl; Alkenyl; Alkenyl; Alkenyl; Alkenyloxy; Alkylthio; Halogenalkoxy; Halogenalkylthio; Alkylsulfonyl; Halogenalkylsulfonyl; Phenyl; Phenylalkyl; Phenoxy oder Phenylthio, ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei

Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff; wobei die genannten organischen Reste weiter substituiert sein können;

R² Wasserstoff; Hydroxyl; Alkoxy; Alkyl; Cycloalkyl; Alkenyl; Alkinyl; Di-C₁-C₄-alkylamino; ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff; Phenyl; Naphthyl; wobei die genannten organischen Reste weiter substituiert sein können

sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide I, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet und diese Verbindungen enthaltende herbizide Mittel.

Die vorliegende Erfindung betrifft Dicarbonsäureimide der Formeln la, Ib oder Ic

$$R^1$$
 $N-R^2$
 R^1
 $N-R^2$
 R^1
 $N-R^2$
 R^1
 $N-R^2$
 R^1
 $N-R^2$
 R^2
 R^2

in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

Χ

Sauerstoff oder Schwefel;

15 R1

10

Wasserstoff; Halogen; Cyano;

 C_1-C_6 -Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C_3-C_6 -Cycloalkyl, C_1-C_4 -Alkoxy, C_1-C_4 -Halogenalkoxy, C_1-C_4 -Alkylthio, C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl, C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen; C₂-C₆-Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro; C₂-C₆-Alkinyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C₁-C₃-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro:

 C_1-C_4 -Alkoxy; C_2-C_6 -Alkenyloxy; C_1-C_4 -Alkylthio; C_1-C_4 -Halogenalkoxy; C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl; C_1-C_4 -Alkylsulfonyl; C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl;

Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro:

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxycarbonyl;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbe-

sondere Methoxycarbonyl; Phenyl oder Phenyl- C_1 - C_4 -alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Alkoxy, C_1 - C_6 -Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

R²

C₁-C₆-Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Alkylthio, Di-C₁-C₄-alkylamino, Halogen, C₃-C₈-Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio oder C₁-C₄-Halogenalkylthio;

C₃-C₈-Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano

oder Nitro;

C₃-C₆-Alkinyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

Di-C₁-C₄-alkylamino;

ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxycarbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

Weiterhin betrifft die Erfindung Verfahren zur Herstellung dieser Verbindungen sowie herbizide Mittel, welche mindestens eine Verbindung Ia, Ib oder Ic enthalten, in der die Substituenten die vorstehend gegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

Aus Arch. Pharm. 320, 1281-83 (1987) sind Isoxazoldicarbonsäureimide mit einer Ethoxycarbonylmethylsubstitution in 3-Stellung bekannt. Ferner ist in J. Chem. Soc. Perkin Trans 1, 2391-4 (1982) das 3-Methyl-isoxazol-4,5-dicarbonsäureimid beschrieben. Synthesis 1988, 449-52 lehrt 5-Amino-substituierte Isothiazoldicarbonsäureimide als Zwischenprodukte zur Herstellung von Farbstoffen.

Speziell substituierte Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide sind bekannt aus J. Het. Chem. 26 (1989) 885; Synthesis 1988, 449; J. Het. Chem. 25 (1988) 901; J. Chem. Soc. Perkin Trans. 1, 1981, 2692). Dem zitierten Stand der Technik sind keine Hinweise auf herbizide Eigenschaften der Dicarbonsäureimide zu entnehmen.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, neue herbizid wirksame Verbindungen zur Verfügung zu stellen.

Demgemäß wurde gefunden, daß die eingangs definierten Dicarbonsäureimide la, lb und lc herbizide Eigenschaften besitzen.

Die erfindungsgemäßen Dicarbonsäureimide I sind auf verschiedenen Wegen herstellbar; man erhält sie beispielsweise nach den folgenden Verfahren:

Weg A

Durch Wasserentzug mit wasserabspaltenden Mitteln, beispielsweise Acetanhydrid, anorganischen Säurehalogeniden wie Thionylchlorid, Phosphor(III)- oder Phosphor(V)-halogeniden wie Phosphortrichlorid oder Phosphorpentachlorid, Phosgen, p-Toluolsulfonsäurechlorid oder Propan-phosphonsäureanhydrid, werden die Verbindungen IIa bis III in die Dicarbonsäureimide der Formel I umgewandelt.

50

30

40

20

25

35

Die Reaktion wird zweckmäßigerweise so durchgeführt, daß man die Dicarbonsäuremonoamide in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt und etwa molare Mengen eines wasserabspaltenden Mittels, gegebenenfalls ebenfalls gelöst in einem inerten Lösungsmittel, zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, beispielsweise durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.

Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe, z. B. Tetrachlorethan, Methylenchlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol und 1, 2-Dichlorbenzol; Ether, z.B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxiethan, Diethylenglykoldiethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; dipolare aprotische Lösungsmittel, z. B. Acetonitril, Dimethylformamid, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, 1,3-Dimethyltetra-hydro-2(1H)-pyrimidinon und 1,3-Dimethylimidazolin-2-on; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol, Pyridin und Chinolin; Ketone, z. B. Aceton, Methylethylketon oder entsprechende Gemische.

Die Dehydratisierung kann bei Temperaturen von -10°C bis zur Rückflußtemperatur des jeweiligen Lösungsmittels, vorzugsweise bei 0 bis 150°C, durchgeführt werden.

Die molaren Verhältnisse, in denen die benötigten Ausgangsverbindungen miteinander umgesetzt werden, betragen im allgemeinen 0,9:1 bis 5:1 für das Verhältnis von wasserabspaltendem Mittel zu Säureamid.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittel(gemisch) liegt im allgemeinen bei 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

Die Herstellung der Dicarbonsäuremonoamide IIa, die für dieses Verfahren als Ausgangsstoffe benötigt werden, ist in der DE-A-38 12 225 beschrieben.

Die Dicarbonsäuremonoamide IIc können wie in der DE-A 39 31 627 beschrieben erhalten werden. Ausgangsstoffe sind Isoxazol- und Isothiazol-3-carbonsäurehalogenide VII, die mit einem Amin VIII umgesetzt werden. Als Carbonsäurehalogenide VII sind die Chloride bevorzugt. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Carbonsäurehalogenid in einem inerten organischen Lösungsmittel wie Dichlormethan, oder einem Ether wie Diethylether oder Methyl-tert.butylether mit einem Amin VIII, ebenfalls gelöst in einem organischen Lösungsmittel, zur Reaktion bringt. Dabei setzt man das Amin VIII zweckmäßigerweise in 2- bis 5-fach molarer Menge, vorzugsweise 2- bis 3-fach molarer Menge, ein, um den entstehenden Halogenwasserstoff zu binden. Man kann auch in Gegenwart einer Hilfsbase wie z.B. einem tertiären Amin (Triethylamin) arbeiten. In diesem Fall genügen 1 bis 1,5 Moläquivalente Amin VIII. Die Reaktionstemperatur kann zwischen 0 und 50°C, vorzugsweise zwischen 0 und 20°C betragen. Die Reaktion ist im allgemeinen nach 1 bis 12 Stunden beendet. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, beispielsweis durch Hydrolyse mit Wasser und Extraktion des Produktes IX mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.

Aus den Isoxazol- bzw. Isothiazolamiden IX erhält man die 3-Aminocarbonyl-isoxazol-4-carbonsäuren bzw. 3-Aminocarbonyl-isothiazol-4-carbonsäuren der Formel IIc, durch Umsetzung mit Alkyllithium wie n-Butyllithium, sec.-Butyllithium und Methyllithium, vorzugsweise unter Zugabe eines unter den Reaktionsbedingungen inerten Lösungsmittels, wie Diethylether oder Tetrahydrofuran. In der Regel wird diese Umsetzung unter einer Inertgasatmosphäre, z.B. Stickstoffatmosphäre, bei Temperaturen zwischen -70 und -80°C

vorgenommen. Die Alkyllithiumverbindung wird bei diesem Verfahren im allgemeinen in 2- 3-fach molarer Menge bezogen auf eingesetztes Amid der Formel IX verwendet. Nach vollständiger Umsetzung wird das Gemisch mit Kohlendioxid behandelt, vorzugsweise in einem inerten Lösungsmittel wie Diethylether oder z.B. Tetrahydrofuran, wobei man die gewünschten Produkte der Formel IIc erhält.

Hal = Halogen wie Cl, Br

5

Die für dieses Verfahren als Ausgangsmaterial benötigten Isoxazol-und Isothiazol-3-carbonsäurehalogenide VII sind literaturbekannt oder können aus den entsprechenden Carbonsäuren auf übliche Art und Weise hergestellt werden.

Die für dieses Verfahren benötigten Carbonsäuren sind literaturbekannt (Beilstein, Hauptwerk sowie 1.-5. Ergänzungswerk, Band 27; R.W. Wiley, The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Five- and Six-Membered Compounds with Nitrogen and Oxygen, Interscience Publishers, New York, London (1962)) oder können nach allgemein literaturbekannten Methoden, z.B. durch Oxidation aus den entsprechenden Alkoholen oder Aldehyden oder durch Hydrolyse aus den entsprechenden Nitrilen hergestellt werden.

Die als Ausgangsmaterialien verwendeten Dicarbonsäuremonoamide IIe und IIf können nach verschiedenen Verfahren erhalten werden:

a) durch Verseifung der entsprechenden Alkylester, z.B. Methyl- oder Ethylester gemäß den unter Reaktionsschritt A angegebenen Bedingungen.

Man erhält diese Alkylester dadurch, daß man einen Diester der Formel III in an sich bekannter Weise mit einem Äquivalent einer wäßrigen Base zum Monoester IVa bzw. IVb hydrolysiert und IVa und IVb danach getrennt oder im Gemisch zunächst in das Halogenid oder eine andere aktivierte Form der Carbonsäure überführt und diese Derivate anschließend mit einem Amin VIII amidiert.

55

30

35

40

45

Die einzelnen Reaktionsschritte A und B dieser Synthesesequenz können wie folgt durchgeführt werden:

Reaktionsschritt A:

VIII

10

15

25

40

Die partielle Verseifung des Diesters III zum Monoester IVa und IVb wird üblicherweise bei Temperaturen von -20 bis 60°C, vorzugsweise -10 bis 30°C, in einem inerten, mit Wasser mischbaren organischen Lösungmittel in Gegenwart von 1,0 bis 1,2 mol-Äquivalenten einer Base durchgeführt.

Als Basen eignen sich insbesondere Hydroxyde von Alkalimetall-Kationen wie Natrium- oder Kaliumhydroxid. Die Base wird im allgemeinen als 5 bis 20 %ige wäßrige Lösung zugesetzt.

Bevorzugte Lösungsmittel für diese Umsetzung sind beispielsweise Dioxan oder der der Esterkomponente in der Formel III entsprechende Alkohol.

Zur Aufarbeitung wird das Reaktionsgemisch üblicherweise angesäuert, wobei sich das gewünschte Produkt als Feststoff oder als Öl abscheidet. Die Isolierung erfolgt in üblicher Weise durch Filtration bzw. Extraktion.

Das Gemisch der beiden Isomeren IVa und IVb kann durch fraktionierte Kristallisation oder auf chromatographischem Wege getrennt werden, oder es kann ohne Trennung weiter umgesetzt werden.

Reaktionsschritt B:

Die Monoester IVa und IVb werden zunächst in an sich bekannter Weise in das Halogenid oder eine andere aktivierte Form der Carbonsäurefunktion überführt und diese Derivate anschließend mit einem Amin VIII amidiert.

Aktivierte Formen der Carbonsäure sind neben Halogeniden wie insbesondere den Chloriden und den Bromiden beispielsweise auch Imidazolide. Im allgemeinen werden die Halogenide bevorzugt.

Man erhält sie durch Umsetzung der Carbonsäuren IVa und IVb mit einem Halogenierungsmittel wie Thionylchlorid, Thionylbromid, Phosphoroxychlorid bzw. -bromid, Phosphortri- und pentachlorid bzw. -bromid, Phosgen sowie elementarem Chlor und Brom.

Das Halogenierungsmittel wird in 1 bis 5, vorzugsweise 1 bis 2 mol-Äquivalenten, eingesetzt.

Die Umsetzung verläuft bei Temperaturen von 0°C bis zum Siedepunkt des Halogenierungsmittels bzw. sofern man in Gegenwart eines inerten organischen Lösungsmittels arbeitet, auch dessen Siedepunkt, vorzugsweise 20 bis 120°C.

Als Lösungsmittel eignen sich beispielsweise Kohlenwasserstoffe und Halogenkohlenwasserstoffe wie Tetrachlorethan, Methylenchlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol, Benzol, Toluol und Xylol.

Üblicherweise werden die aktivierten Carbonsäurederivate isoliert, beispielsweise durch Abdestillieren des Halogenierungsmittels und sofern vorhanden des Lösungsmittels und erst anschließend mit den Aminen umgesetzt.

In diesem Fall wird die Amidierung bei Temperaturen -20 bis 100°C, vorzugsweise -10 bis 20°C in

einem inerten aprotisch polaren organischen Lösungsmittel durchgeführt.

Für diese Umsetzung eignen sich insbesondere Halogenkohlenwasserstoffe wie Dichlormethan und Ether wie Diethylether und tert.-Butylmethylether als Lösungsmittel.

Da bei der Amidierung von Säurehalogeniden Halogenwasserstoff gebildet wird, empfiehlt es sich, das Amin VIII in 2 bis 5 mol-Äquivalenten Überschuß, vorzugsweise 2 bis 3 mol-Äquivalenten zuzusetzen. Sofern das Amin in etwa äquimolaren Mengen (1 bis 1,2 mol-Äquivalenten) eingesetzt wird, sollte zum Binden des Halogenwasserstoffs eine Base, insbesondere ein tertiäres Amin wie Triethylamin oder Pyridin zugegeben werden.

Sofern man von einem Gemisch der Monoester IVa und IVb ausgeht, erhält man bei der Umsetzung ein Gemisch aus den isomeren Carbonsäureamiden. Dieses Gemisch kann auf herkömmliche Weise, beispielsweise durch fraktionierte Kristallisation oder Chromatographie in die Einzelkomponenten aufgetrennt werden.

Die für diese Synthesesequenz benötigten Edukte III sind bekannt (Bull. Soc. Chim. Fr. 1974, 2079) oder nach bekannten Methoden (Bull. Soc. Chim. Fr. 1969, 1762; J. Chem. Soc., 1953, 93) zugänglich.

b) Verfahren zur Herstellung von Thiazolcarbonsäureimiden Ile und Ilf.

Man erhält diese Thiazolcarbonsäureamide IIe und IIf besonders vorteilhaft, indem man ein Dicarbonsäureanhydrid der Formel V in an sich bekannter Weise mit einem Amin der Formel VIII zu den Isomeren IIe und IIf umsetzt und anschließend das Gemisch in die Isomeren auftrennt.

Die Umsetzung wird üblicherweise bei Temperaturen von -10 bis 150°C, vorzugsweise 20 bis 120°C in einem inerten aprotisch polaren organischen Lösungsmittel durchgeführt.

Insbesondere kommen als Lösungsmittel Halogenkohlenwasserstoffe, z. B. Tetrachlorethan, Methylen-chlorid, Chloroform, Dichlorethan, Chlorbenzol und 1,2-Dichlorbenzol; Ether z. B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan; dipolare aprotische Lösungsmittel, z. B. Acetonitril, Dimethylformamid, Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon, 1,3-Dimethyltetrahydro-2(1H)-pyrimidinon und 1,3-Dimethylimidazolidin-2-on; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol, Pyridin und Chinolin; Ketone, z. B. Aceton, Methylethylketon oder entsprechende Gemische zur Anwendung.

Das Amin VIII wird im allgemeinen in äquimolaren Mengen oder im Überschuß, vorzugsweise in Mengen von 1,0 bis 5,0 mol-Äquivalenten, bezogen auf V eingesetzt.

Die für dieses Verfahren benötigten Dicarbonsäureanhydride sind bekannt oder können nach bekannten Methoden hergestellt werden (Bull. Soc. Chim. Fr. 1969, 1762; CS-A-195 369; CS-A-195 370).

c) Verfahren zur Herstellung der Verbindungen IIe und IIf in denen R¹ nicht Halogen oder Cyano bedeutet:

20

25

30

35

$$- \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{COOH}$$

$$= \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{COOH}$$

$$= \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}}$$

$$= \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}}$$

$$= \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}}$$

$$= \frac{1}{R^{1}} \times \frac{O}{R^{1}} \times \frac{O}$$

10

15

45

Man erhält diese isomeren Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamide, indem man eine entsprechende Carbonsäure gemäß den unter B geschilderten Bedingungen aktiviert und amidiert und die so erhaltenen Amide VIa und VIb anschließend in an sich bekannter Weise in Gegenwart eines Carboxylierungsreagens umsetzt.

Der Reaktionsschritt A dieser Synthesesequenz wird im allgemeinen und im besonderen entsprechend den im Verfahren a) unter Punkt B beschriebenen Bedingungen durchgeführt.

Reaktionsschritt B:

Die Carboxylierung der Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamide Vla bzw. Vlb erfolgt in der Regel bei Temperaturen von 0 bis -100°C vorzugsweise -50 bis -80°C in einem aprotisch polaren inerten organischen Lösungsmittel in Gegenwart einer Base unter Ausschluß von Feuchtigkeit.

Bevorzugtes Carboxylierungsreagens ist gasförmiges oder festes Kohlendioxid.

Geeignete Lösungsmittel sind insbesondere Ether, z. B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan.

Als Basen finden bevorzugt Organometallverbindungen wie Methyllithium, n-Butyllithium, s-Butyllithium, t-Butyllithium oder Phenyllithium Verwendung.

Die Umsetzung wird üblicherweise so durchgeführt, daß zunächst eine Lösung des Oxazol- bzw. Thiazolcarbonsäureamids VIa bzw. VIb mit bis zu 3 Mol-Äquivalenten der gelösten Base versetzt wird, wobei ein am Heterocyclus metalliertes Derivat entsteht, welches bei der anschließenden Zugabe des elektrophilen Carboxylierungsreagenzes zum gewünschten Produkt IIe bzw. Ilf abreagiert.

Die für das vorstehende Verfahren benötigten Carbonsäuren sind literaturbekannt (Beilstein Band 27, 1.-5. Ergänzungswerke) oder sie können nach bekannten Methoden, beispielsweise durch Oxidation der entsprechenden Alkohole oder Aldehyde oder durch Hydrolyse der entsprechenden Nitrile hergestellt werden (J. V. Metzger in "The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Vol. 34, Part 1, Thiazol and its Derivatives", Arnold Weissberger and E. D. Ward, C. Taylor (Editor), John Wiley and Sons, S. 519 ff, I. J. Turchi in "The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Vol. 45, Oxazoles", Arnold Weissberger and E. D. Ward, C. Taylor (Editor), John Wiley and Sons).

d) Verbindungen der Formel Ilf können auch gewonnen werden, indem man entsprechende Dicarbonsäurester in an sich bekannter Weise mit Aminen umsetzt und die resultierenden Amide verseift:

$$R^{1} \longrightarrow QR^{3} + \frac{H_{2}NR^{2}}{VIII} \longrightarrow R^{1} \longrightarrow QR^{3} \longrightarrow QR^{$$

Zweckmäßigerweise geht man dabei so vor, daß man den Diester in einem inerten organischen Lösungsmittel löst und mit einem Amin VIII umsetzt.

Als Lösungsmittel verwendet man für diese Umsetzungen Ether, z.B. Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydroforan und Dioxan; Aromaten, z. B. Benzol, Toluol, Xylol oder Mesitylen; Alkohole, z. B. Methanol, Ethanol, iso-Propanol und tert.-Butanol oder entsprechende Gemische.

Die Umsetzung kann bei Temperaturen von -100°C bis zur Rückflußtemperatur des jeweiligen Lösungsmittels bzw. -gemisches, vorzugsweise bei -60°C bis 150°C, durchgeführt werden.

Das molare Verhältnis, in dem Diester und Amin eingesetzt werden, beträgt im allgemeinen 1:1 bis 1:2, vorzugsweise 1:1 bis 1:1,2.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittel beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2.0 mol/l.

Besonders bevorzugt arbeitet man in Alkoholen wie Ethanol in Gegenwart von einem Äquivalent Amin bei 50 bis 100°C. Die für die Umsetzung benötigten Diester sind literaturbekannt oder können in Anlehnung an beschriebene Methoden hergestellt werden (Bull. Soc. Chim. Fr., 1969, 1762; J. Chem. Soc., 1953, 93).

Neben den vorstehend geschilderten Verfahren a-d zur Herstellung der Ausgangsverbindungen IIe und IIf gibt es weitere Synthesemöglichkeiten, die den folgenden Literaturstellen zu entnehmen sind: Beilstein, Hauptwerk sowie 1.-5. Ergänzungswerk, Band 27; R. W. Wiley, The Chemistry of Heterocyclic Compounds, Five- and Six-Membered Compounds with Nitrogen and Oxygen, Interscience Pubishers, New York, London (1962); Heterocyclic Chemistry, Vol. 6, Five-membered Rings with Two or More Oxygen, Sulfur or Nitrogen Atoms, Pergamon Press, 1984; J. March, Advanced Organic Chemistry, Third edition, John Wiley and Sons, 1985; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, 4. Auflage, Thieme Verlag, Bände IV, VI, VII, VIII, X; DE-A 39 32 052.

Weg B

5

10

25

Ein weiteres Verfahren zur Synthese von Verbindungen der Formel la besteht in der Umsetzung von Hydroxamsäurechloriden X mit Halogenmaleinsäureimiden XI. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Halogenmaleinsäureimid XI in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt, etwa molare Mengen des Hydroxamsäurechlorids X zugibt und anschließend eine etwa doppelt molare Menge einer Base zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, z.B. durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel und Einengen des organischen Lösungsmittels.

50

Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe wie Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol, Tetrachlorethan, Dichlormethan und Chloroform; Ether wie Diethylether, Methyl-tert.-butylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Tetrahydrofuran und Dioxan oder Aromaten wie Benzol, Toluol und Xylol oder Gemische dieser Lösungsmittel.

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von -10°C bis 50°C, vorzugsweise bei 0 bis 30°C, durchgeführt werden.

Als Basen kommen vorzugsweise Stickstoffbasen wie 2-, 3-, 4-Picolin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, Triethylamin (TEA), Pyridin und 1,8-Diazabicyclo(5.4.0)undec-7-en (DBU) in Betracht.

Die Reaktionspartner werden insbesondere im Molverhältnis 1:1 eingesetzt, die Stickstoffbase wird in der doppelt bis dreifach molaren Menge zugesetzt.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittelgemisch beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

25 Weg C:

20

45

50

55

Ein weiteres Verfahren zur Synthese der Verbindungen la besteht in der Oxidation von Isoxazolindicarbonsäureimiden XIII, die z.B. hergestellt werden durch Umsetzung von Hydroxamsäurechloriden X mit Maleinimiden XIII. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Maleinimid XIII in einem inerten organischen Lösungsmittel vorlegt, etwa molare Mengen des Hydroxamsäurechlorids X zugibt und anschließend eine etwa molare Menge einer Base zutropft. Das Gemisch kann wie üblich aufgearbeitet werden, z.B. durch Hydrolyse mit Wasser und Absaugen oder Extraktion des Produktes mit einem organischen Lösungsmittel.

Als Lösungsmittel für diese Umsetzungen verwendet man zweckmäßigerweise Halogenkohlenwasserstoffe wie Tetrachlorethan, Dichlormethan, Dichlorethan, Chlorbenzol, 1,2-Dichlorbenzol und Chloroform oder Aromaten wie Benzol, Toluol und Xylol oder Gemische dieser Lösungsmittel.

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von -10 bis 50°C, vorzugsweise bei 0°C bis 30°C, durchgeführt werden.

Als Basen kommen Stickstoffbasen wie 2-, 3-, 4-Picolin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethylcyclohexylamin, Triethylamin (TEA), Pyridin oder 1,8-Diazabicyclo(5.4.0)undec-7-en (DBU) in Betracht.

Die Reaktionspartner werden insbesondere in Molverhältnissen von 1 bis 1,1:1 (Maleinimid:Hydroxamsäurechlorid) eingesetzt, die Stickstoffbase wird in der einfach bis doppelt molaren Menge zugesetzt.

Die Konzentration der Edukte im Lösungsmittelgemisch beträgt im allgemeinen 0,1 bis 5 mol/l, bevorzugt 0,2 bis 2 mol/l.

Die Isoxazoldicarbonsäureimide la sind durch Dehydrierung der Isoxazolinimide XII zugänglich. Dabei geht man zweckmäßigerweise so vor, daß man das Isoxazolinimid XII in einem inerten organischen

Lösungsmittel vorlegt und mit etwa molaren Mengen Oxidationsmittel versetzt.

Als Lösungsmittel für die Dehydrierung kommen insbesondere aromatische Kohlenwasserstoffe wie Benzol, Toluol oder Xylol in Betracht.

Als Oxidationsmittel verwendet man bevorzugt Natriumhypochlorit, Nitrobenzol oder Chinone wie 2,3,5,6-Tetrachlor-p-benzochinon oder 5,6-Dichlor-2,3-dicyano-p-benzochinon (DDQ).

Die Umsetzungen können bei Temperaturen von 50°C bis zur Siedetemperatur des verwendeten Lösungsmittels durchgeführt werden.

Die Reaktionspartner können im Molverhältnis 1:1 bis 1:10 (Isoxazolinimid:Oxidationsmittel) eingesetzt werden.

Im Hinblick auf die bestimmungsgemäße Verwendung der Verbindungen I kommen als Substituenten bevorzugt folgende Reste in Betracht:

X

10

Sauerstoff oder Schwefel;

R

Halogen wie Fluor, Chlor, Brom und Iod, insbesondere Fluor und Chlor; Cvano:

C₁-C₆-Alkyl, wie Methyl, Ethyl, n-Propyl, iso-Propyl, n-Butyl, sek.-Butyl, iso-Butyl und tert.-Butyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl und 1-Ethyl-2-methylpropyl, insbesondere Methyl, Ethyl, Propyl und iso-Propyl, welches ein bis fünf Halogenatome, insbesondere Fluorund/oder Chloratome oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann:

C₃-C₈-Cycloalkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, insbesondere Cyclopropyl; C₁-C₄-Alkoxy wie Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy, 2-Methylethoxy, n-Butoxy, 1-Methylpropoxy, 2-Methylpropoxy und 1,1-Dimethylethoxy, insbesondere Methoxy, Ethoxy, 1-Methylethoxy und 1,1-Dimethylethoxy; C₁-C₄-Halogenalkoxy wie Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, Dichlorfluormethoxy, 1-Fluorethoxy, 2-Fluorethoxy, 2,2-Difluorethoxy, 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy, 2,2,2-Trifluorethoxy, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethoxy und Pentafluorethoxy, insbesondere Trifluormethoxy und Pentafluorethoxy; C₁-C₄-Alkylthio wie Methylthio, Ethylthio, Propylthio, 1-Methylethylthio, Butylthio, 1-Methylpropylthio, 2-Methylpropylthio und 1,1-Dimethylethylthio, insbesondere Methylthio und Ethylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio wie Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, 1-Fluorethylthio, 2-Fluorethylthio, 2,2-Difluorethylthio, 2,2,2-Trifluorethylthio, insbesondere Trifluormethylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, wie Methylsulfonyl und Ethylsulfonyl, insbesondere Methylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl, wie Trifluormethylsulfonyl und Pentafluorethylsulfonyl, insbesondere Trifluormethylsulfonyl; oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl wie Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl, Cyclohexyl, Cyclohexyl, Cyclohexyl, und Cyclobexyl, insbesondere Cyclopropyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl oder Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Chlor und Fluor;

C2-C8-Alkenyl wie Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-1-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 1-Pentenyl, 2-Pentenyl, 3-Pentenyl, 4-Pentenyl, 1-Methyl-1-butenyl, 2-Methyl-1-butenyl, 3-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-2-butenyl, 2-Methyl-2-butenyl, 1-Methyl-3-butenyl, 2-Methyl-3-butenyl, 3-Methyl-3-butenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-1-propenyl, 1,2-Dimethyl-2-propenyl, 1-Ethyl-1-propenyl, 1-Ethyl-2-propenyl, 1-Hexenyl, 2-Hexenyl, 2nyl, 3-Hexenyl, 4-Hexenyl, 5-Hexenyl, 1-Methyl-1-pentenyl, 2-Methyl-1-pentenyl, 3-Methyl-1-pentenyl, 4-Methyl-1-pentenyl, 1-Methyl-2-pentenyl, 2-Methyl-2-pentenyl, 3-Methyl-2-pentenyl, 1-Methyl-3-pentenyl, 2-Methyl-3-pentenyl, 4-Methyl-2-pentenyl, 1-Methyl-3-pentenyl, 2-Methyl-3-pentenyl, 3-Methyl-3-pentenyl, 4-Methyl-3-pentenyl, 1-Methyl-4-pentenyl, 2-Methyl-4-pentenyl, 3-Methyl-4-pentenyl, 4-Methyl-4-pentenyl, 1,1-Dimethyl-2-butenyl, 1,1-Dimethyl-3-butenyl, 1,2-Dimethyl-1-butenyl, 1,2-Dimethyl-2butenyl, 1,2-Dimethyl-3-butenyl, 1,3-Dimethyl-1-butenyl, 1,3-Dimethyl-2-butenyl, 1,3-Dimethyl-3-butenyl, 1,3-Dimethyl-1-butenyl, 2,3-Dimethyl-1-butenyl, 2,3-Dimethyl-2-butenyl, 2,3-Dimethyl-3-butenyl, 3,3-Dimethyl-1butenyl, 1-Ethyl-1-butenyl, 1-Ethyl-2-butenyl, 1-Ethyl-3-butenyl, 2-Ethyl-1-butenyl, 2-Et Ethyl-3-butenyl, 1,1,2-Trimethyl-2,2-propenyl, 1-Ethyl-1-methyl-2-propenyl, 1-Ethyl-2-methyl-1-propenyl und 1-Ethyl-2-methyl-2-propenyl, insbesondere 2-Propenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy, und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; Halogenalkyl wie vorste-

hend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;

- C₂-C₆-Alkinyl wie Ethinyl, 1-Propinyl, 2-Propinyl, 1-Butinyl, 2-Butinyl, 3-Butinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1-Pentinyl, 2-Pentinyl, 3-Pentinyl, 4-Pentinyl, 1-Methyl-3-butinyl, 2-Methyl-3-butinyl, 1-Methyl-2-butinyl, 3-Methyl-1-butinyl, 1,1-Dimethyl-2-propinyl, 1-Ethyl2-propinyl, 1-Hexinyl, 2-Hexinyl, 3-Hexinyl, 4-Alkinyl, 4-Hexinyl, 1-Methyl-2-pentinyl, 1-Methyl-3-pentinyl, 1-Methyl-4-pentinyl, 2-Methyl-3-pentinyl, 2-Methyl-4-pentinyl, 2-Methyl-
- nyl, 3-Methyl-pentinyl, 3-Methyl-4-pentinyl, 4-Methyl-1-pentinyl, 4-Methyl-2-pentinyl, 1,1-Dimethyl-2-butinyl, 1,1-Dimethyl-3-butinyl, 2,2-Dimethyl-4-butinyl, 3,3-Dimethyl-1-butinyl, 1-Ethyl-2-butinyl, 1-Ethyl-3-butinyl, 2-Ethyl-3-butinyl und 1-Ethyl-1-methyl-2-propinyl, insbesondere 2-Propinyl, welches einen bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen wie oben genannt, insbesondere lod; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy, und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl;
- Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy, Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio,
- Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;
 - C₂-C₆-Alkenyloxy wie Vinyloxy, 2-Propenyloxy, 2-Methyl-2-propenyloxy, (E)-2-Butenyloxy, (Z)-2-Butenyloxy, 1,3-Dimethyl-2-butenyloxy, 2-Pentenyloxy, 2-Hexenyloxy, insbesondere 2-Propenyloxy und (E)-2-Butenyloxy;
- 25 C₃-C₆-Alkinyloxy wie 2-Propinyloxy, 2-Butinyloxy, 1-Ethyl-2-butinyloxy, 1-Methyl-2-propinyloxy, 2-Pentinyloxy, 2-Hexinyloxy, insbesondere 2-Propinyloxy;
 - C₁-C₄-Alkylthio wie obenstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio;
 - C₁-C₄-Halogenalkylthio wie obenstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio;
- 30 C1-C4-Alkylsulfonyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methylsulfonyl;

sondere Methoxycarbonyl;

- C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethylsulfonyl;
- Phenoxy oder Phenylthio, wobei diese Reste ein bis drei der folgenden Gruppen tragen können: C₁-C₄-Alkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; C₁-C₄-Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; C₁-C₄-Alkoxy wie vorstehend genannt,
- insbesondere Methoxy und Ethoxy; C₁-C₄-Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; C₁-C₄-Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; C₁-C₄-Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;
- 40 ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer Rest enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wie 2-Tetrahydrofuranyl, 3-Tetrahydrofuranyl, 4-Tetrahydropyranyl, 2-Tetrahydropyranyl, 3-Tetrahydropyranyl, 3-Furanyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Furanyl, 3-Tetrahydropyranyl, 3-Isoxazolyl, 4-Isoxazolyl, 5-Isothiazolyl, 4-Isothiazolyl, 3-Isothiazolyl, 2-Oxazolyl, 4-Thiazolyl, 4-Oxazolyl, 2-Thiazolyl, 5-Oxazolyl, 5-Thiazolyl, 2-Imidazolyl, 4-
- Imidazolyl, 5-Imidazolyl, 3-Pyrrolyl, 2-Pyrrolyl, 3-Pyrazolyl, 4-Pyrazolyl, 5-Pyrazolyl, 4-Pyridyl, 3-Pyridyl und 2-Pyridyl, wobei diese Ringe ein oder zwei der folgenden Reste tragen können: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;
- ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere
 - Phenyl oder Phenyl-C1-C4-alkyl, z.B. Benzyl oder Phenylethyl, wobei der Phenylrest jeweils eine bis drei

der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und iso-Propyl; Halogenalkyl wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethyl und Chlordifluormethyl; Alkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie vorstehend genannt, insbesondere Trifluormethoxy, Pentafluorethoxy und Trichlormethoxy; Alkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Methylthio; Halogenalkylthio wie vorstehend genannt, insbesondere Difluormethylthio, Pentafluorethylthio und Trifluormethylthio; Halogen wie vorstehend genannt, insbesondere Fluor und Chlor, Cyano oder Nitro;

Wasserstoff; Hydroxy;

- C₁-C₄-Alkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy;
 C₁-C₆-Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl und 1,1-Dimethylethyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylpropyl, welches eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, Alkoxy-alkoxy wie Methoxy-methoxy, Ethoxy-ethoxy insbesondere Methoxy und Ethoxy;

 Light and the control of the control of
 - Halogenalkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Dialkylamino insbesondere Dimethylamino und Diethylamino; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cycloalkyl wie bei R¹ genannt, insbesondere Cyclopropyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl; oder einmal Phenyl, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann:
- Halogen; Cyano; Nitro; Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio; oder Halogenalkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio;
- 25 C₃-C₈-Cycloalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Cyclopropyl, Cyclobutyl, Cyclopentyl und Cyclohexyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; Halogenalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Nitro oder Cyano;
- C₃-C₆-Alkenyl wie unter R¹ genannt, insbesondere 2-Propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl und 2-Butenyl, welches ein-bis dreimal durch Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor, und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenal-kyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cyano oder Nitro;
 - C₃-C₆-Alkinyl wie unter R¹ genannt, insbesondere 2-Propinyl, 1-Methyl-2-propinyl und 1,1-Dimethyl-2-propinyl, welches ein- bis dreimal durch Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl; Halogenalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethyl, Alkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R¹
- Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Cyano oder Nitro;
 - C₁-C₄-Dialkylamino, insbesondere Dimethylamino und Diethylamino;
 - ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff wie unter R¹ genannt, der ein- bis dreimal durch Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; oder Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor substituiert sein kann;
 - ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;
 - Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl, Ethyl und 1-Methylethyl; Halogenalkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethyl; Alkoxy

wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy; Halogenalkoxy wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethoxy; Alkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Methylthio und Ethylthio; Halogenalkylthio wie unter R¹ genannt, insbesondere Trifluormethylthio; Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Nitro, Cyano, Formyl; C¹-C⁴-Alkanoyl wie Acetyl, Propionyl, Butyryl, insbesondere Acetyl; Halogenalkanoyl wie Trifluoracetyl, Trichloracetyl, Pentafluorpropionyl, insbesondere Trifluoracetyl; oder Alkoxycarbonyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methoxycarbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch Alkyl wie unter R¹ genannt, insbesondere Methyl und Ethyl, oder Halogen wie unter R¹ genannt, insbesondere Fluor und Chlor substituiert sein kann.

Beispiele für herbizid wirksame Verbindungen der Formel la und lb sind nachstehend im einzelnen aufgeführt:

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

10

15

20

40

45

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, nyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl:

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl

nyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl. 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl nyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl:

5

10

30

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2.2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, nyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl.

Beispiele für herbizid wirksame Verbindungen der Formel ic sind nachstehend im einzelnen aufgeführt:

5

25

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyl, 2-Phenylethenyl, 1-Butenyl, 2-Butenyl, 3-Butenyl, 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl. 2-Fluorohenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 3-Methylphenyl henyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl. 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

wobei R1 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenvl. 2-Phenvlethenvl. 1-Butenvl. 2-Butenvl. 3-Butenvl. 1-Methyl-1-propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 2-Methyl-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluormethoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyi, 3-Fluorphenyi, 4-Fluorphenyi, 2-Chlorphenyi, 3-Chlorphenyi, 4-Chlorphenyi, 2-Methylphenyi, 3-Methylphenyi, 3-Methylphenyi henyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

oder

wobei R¹ jeweils die folgende Bedeutung hat:

Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, Chlormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Chlordifluormethyl, Trifluormethyl, Pentafluorethyl, Difluormethyl, 1-Chlorethyl, 2-Chlorethyl, 1-Methyl-1-chlorethyl, 1-Methyl-2-chlorethyl, Methoxymethyl, 1-Methylmethoxymethyl, 1-Methyl-2-methoxyethyl, 1-Methylethoxymethyl, Ethoxymethyl, Ethenyl, 1-Propenyl, 2-Propenyl, 1-Methylethenyl, 1-Ethylethenyi, 2-Phenylethenyi, 1-Butenyi, 2-Butenyi, 3-Butenyi, 1-Methyi-1-propenyi, 1-Methyi-2-propenyi, 2-Methyi-2-propenyl, 2-Propinyl, Methoxy, Ethoxy, Propoxy, 1-Methylethoxy, Butoxy, 1-Methylpropoxy, 1,1-Dimethylethoxy, Methylthio, Ethylthio, Chlordifluormethoxy, Trifluor-methoxy, Trichlormethylthio, Phenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, henyl, 4-Methylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, Phenoxy, Phenylthio, 2-Chlorphenoxy, 3-Chlorphenoxy, 4-Chlorphenoxy, 2,4-Dichlorphenoxy, Benzyl, 2-Chlorbenzyl, 3-Chlorbenzyl, 4-Chlorbenzyl, 2-Fluorbenzyl, 3-Fluorbenzyl, 4-Fluorbenzyl, 2-Thienyl, 3-Thienyl, 2-Pyridyl, 3-Pyridyl, 4-Pyridyl;

35

10

15

40

45

50

5 oder

10
$$h_{3}C$$

N-R² $h_{3}C$

N-R² $h_{3}C$

N-R² $h_{3}C$

15 oder

20 oder

25 $h_{3}C$

N-R² $h_{3}C$

wobei R2 jeweils die folgende Bedeutung hat:

Methyl, Ethyl, Propyl, 1-Methylethyl, Butyl, 1-Methylpropyl, 2-Methylpropyl, 1,1-Dimethylethyl, Pentyl, 1-Methylbutyl, 2-Methylbutyl, 3-Methylbutyl, 1,1-Dimethylpropyl, 1,2-Dimethylpropyl, 2,2-Dimethylpropyl, 1-Ethylpropyl, Hexyl, 1-Methylpentyl, 2-Methylpentyl, 3-Methylpentyl, 4-Methylpentyl, 1,1-Dimethylbutyl, 1,2-Dimethylbutyl, 1,3-Dimethylbutyl, 2,2-Dimethylbutyl, 2,3-Dimethylbutyl, 3,3-Dimethylbutyl, 1-Ethylbutyl, 2-Ethylbutyl, 1,1,2-Trimethylpropyl, 1,2,2-Trimethylpropyl, 1-Ethyl-1-methylpropyl, 1-Ethyl-2-methylpropyl, cyclo-Propyl, cyclo-Butyl, cyclo-Pentyl, cyclo-Hexyl, cyclo-Heptyl, cyclo-Octyl, 1-Methyl-cyclo-Propyl, cyclo-Propyl-methyl, 1-(cyclo-Propyl)-ethyl, 1-Methylcyclohexyl, 1-Ethylcyclohexyl, Cyclohexylmethyl, 2-Propenyl, 1-Methyl-2-propenyl, 1,1-Dimethyl-2-propenyl, 2-Propinyl, 1-Methyl-2-propinyl, 1,1-Dimethylpropinyl, Phenylmethyl, 1-Methylphenylmethyl, 1,1-Dimethylphenylmethyl, 2-Phenylethyl, 2-Methylthioethyl, 1-Methyl-2-methylthioethyl, 1,1-Dimethyl-2-methylthioethyl, 3-Methylthiopropyl, 2-Fluorethyl, 2-Fluor-1-methylethyl, 1,1-Dimethyl-2-fluorethyl, 2-Chlor-thyl, 2-Chlor-1-methylethyl, 2-Chlor-1,1-Dimethylethyl, 2-Methoxyethyl, 2-Methoxy-1-methylethyl, 1,1-Dimethyl-2-methoxyethyl, 3-Methoxypropyl, 2-Cyanoethyl, 2-Cyanoethyl, methylethyl, 2-Cyano-1,1-dimethylethyl, Dimethylamino, Diethylamino, Morpholino, Piperidino, Phenyl, 2-Methylphenyl, 3-Methylphenyl, 4-Methylphenyl, 2-Ethylphenyl, 3-Ethylphenyl, 4-Ethylphenyl, 2,3-Dimethylphenyl, 2,4-Dimethylphenyl, 2,5-Dimethylphenyl, 2,6-Dimethylphenyl, 3,4-Dimethylphenyl, 3,5-Dimethylphenyl nyl, 2,3,4-Trimethylphenyl, 2,3,5-Trimethylphenyl, 2,4,5-Trimethylphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, 3,4,5-Trimethylphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, 2,4,5-Trimethylphenyl, 2,4,6-Trimethylphenyl, 2,4,5-Trimethylphenyl, 2,4,5-Trimethylph thylphenyl, 2-Trifluormethylphenyl, 3-Trifluormethylphenyl, 4-Trifluormethylphenyl, 2-Fluorphenyl, 3-Fluorphenyl, 3-Fluorpheny henyl, 4-Fluorphenyl, 2-Chlorphenyl, 3-Chlorphenyl, 4-Chlorphenyl, 2,3-Difluorphenyl, 2,4-Difluorphenyl, 2,5-Difluorphenyl, 2,6-Difluorphenyl, 2,3-Dichlorphenyl, 2,4-Dichlorphenyl, 2,5-Dichlorphenyl, 2,6-Dichlorphenyl, 2,3,4-Trichlorphenyl, 2,3,5-Trichlorphenyl, 2,4,6-Trichlorphenyl, 3,4,5-Trichlorphenyl, 2-Cyanophenyl, 3-Cy-

anophenyl, 4-Cyanophenyl, 2-Methoxyphenyl, 3-Methoxyphenyl, 4-Methoxyphenyl, 2,3-Dimethoxyphenyl, 2,4-Dimethoxyphenyl, 2,5-Dimethoxyphenyl, 3,4-Dimethoxyphenyl, 3,5-Dimethoxyphenyl, 3,5-Dimethoxyphenyl, 3-Trifluormethoxyphenyl, 3-Trifluormethoxyphenyl, 4-Trifluormethoxyphenyl, 2-Nitrophenyl, 3-Nitrophenyl, 4-Nitrophenyl, 2,3-Dinitrophenyl, 2,5-Dinitrophenyl, 2,5-Dinitrophenyl, 2,5-Dinitrophenyl, 3,5-Dinitrophenyl, 1-Naphthyl, 2-Naphthyl, 3-Tetrahydrofuryl, 4-Tetrahydropyranyl, 2-Thiazolyl.

Die vorstehend genannten Restedefinitionen für R¹ und R² können darüberhinaus in den Oxazol- bzw. Thiazol-4,5-dicarbonsäureimiden zu anderen als den aufgeführten Kombinationen miteinander kombiniert werden.

Als Salze der Verbindungen der Formeln la, Ib und Ic kommen landwirtschaftlich brauchbare Salze, beispielsweise Alkalimetallsalze, wie das Kalium- oder Natriumsalz, Erdalkalimetallsalze, wie das Calcium-, Magnesium- oder Bariumsalz, Mangan-, Kupfer-, Zink- oder Eisensalze sowie Ammonium, Phosphonium-, Sulfonium- oder Sulfoxoniumsalze, beispielsweise Ammoniumsalze, Tetraalkylammoniumsalze, Benzyltrialkylammoniumsalze, Trialkylsulfoniumsalze oder Trialkylsulfoxoniumsalze in Betracht.

10

15

20

Die erfindungsgemäßen herbiziden Verbindungen bzw. die sie enthaltenden Mittel können beispielsweise in Form von direkt versprühbaren Lösungen, Pulvern, Suspensionen, auch hochprozentigen wäßrigen, öligen oder sonstigen Suspensionen oder Dispersionen, Emulsionen, Öldispersionen, Pasten, Stäubemitteln, Streumitteln oder Granulaten durch Versprühen, Vernebeln, Verstäuben, Verstreuen oder Gießen angewendet werden. Die Anwendungformen richten sich nach den Verwendungszwecken; sie sollten in jedem Fall möglichst die feinste Verteilung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gewährleisten.

Die Verbindungen eignen sich allgemein zur Herstellung von direkt versprühbaren Lösungen, Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen. Als inerte Zusatzstoffe kommen Mineralölfraktionen von mittlerem bis hohem Siedepunkt, wie Kerosin oder Dieselöl, ferner Kohlenteeröle sowie Öle pflanzlichen oder tierischen Ursprungs, aliphatische, cyclische und aromatische Kohlenwasserstoffe, z.B. Toluol, Xylol, Paraffin, Tetrahydronaphthalin, alkylierte Naphthaline oder deren Derivate, Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Cyclohexanol, Cyclohexanon, Chlorbenzol, Isophoron oder stark polare Lösungsmittel wie N,N-Dimethylformamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidon oder Wasser in Betracht.

Wäßrige Anwendungsformen können aus Emulsionskonzentraten, Dispersionen, Pasten, netzbaren Pulvern oder wasserdispergierbaren Granulaten durch Zusatz von Wasser bereitet werden. Zur Herstellung von Emulsionen, Pasten oder Öldispersionen können die Substrate als solche oder in einem Öl oder Lösungsmittel gelöst, mittels Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel in Wasser homogenisiert werden. Es können aber auch aus wirksamer Substanz, Netz-, Haft-, Dispergier- oder Emulgiermittel und eventuell Lösungsmittel oder Öl bestehende Konzentrate hergestellt werden, die zur Verdünnung mit Wasser geeignet sind.

Als oberflächenaktive Stoffe kommen die Alkali-, Erdalkali-, Ammoniumsalze von aromatischen Sulfonsäuren, z.B. Lignin-, Phenol-, Naphthalin- und Dibutylnaphthalinsulfonsäure, sowie von Fettsäuren, Alkylund Alkylarylsulfonaten, Alkyl-, Laurylether- und Fettalkoholsulfaten, sowie Salze sulfatierter Hexa-, Hepta- und Octadecanolen, sowie von Fettalkoholglykolether, Kondensationsprodukte von sulfoniertem Naphthalin und seiner Derivate mit Formaldehyd, Kondensationsprodukte des Naphthalins bzw. der Naphthalinsulfonsäuren mit Phenol und Formaldehyd, Polyoxyethylenoctylphenolether, ethoxyliertes Isooctyl-, Octyl- oder Nonylphenol, Alkylphenol-, Tributylphenylpolyglykolether, Alkylarylpolyetheralkohole, Isotridecylalkohol, Fettalkoholethylenoxid-Kondensate, ethoxyliertes Rizinusöl, Polyoxyethylenalkylether oder Polyoxypropylen, Laurylalkoholpolyglykoletheracetat, Sorbitester, Lignin-Sulfitablaugen oder Methylcellulose in Betracht.

Pulver-, Streu- und Stäubemittel können durch Mischen oder gemeinsames Vermahlen der wirksamen Substanzen mit einem festen Trägerstoff hergestellt werden.

Granulate, z.B. Umhüllungs-, Imprägnierungs- und Homogengranulate können durch Bindung der Wirkstoffe an feste Trägerstoffe hergestellt werden. Feste Trägerstoffe sind Mineralerden wie Silicagel, Kieselsäuren, Silikate, Talkum, Kaolin, Kalkstein, Kalk, Kreide, Bolus, Löß, Ton, Dolomit, Diatomeenerde, Calcium- und Magnesiumsulfat, Magnesiumoxid, gemahlene Kunststoffe, Düngemittel, wie Ammoniumsulfat, Ammoniumphosphat, Ammoniumnitrat, Harnstoffe und pflanzliche Produkte, wie Getreidemehl, Baumrinden, Holz- und Nußschalenmehl, Cellulosepulver oder andere feste Trägerstoffe.

Die Formulierungen enthalten zwischen 0,1 und 95 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 Gew.-%, Wirkstoff. Die Wirkstoffe werden dabei in einer Reinheit von 90 % bis 100 %, vorzugsweise 95 % bis 100 % (nach NMR-Spektrum) eingesetzt.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen I können beispielsweise wie folgt formuliert werden:

- I. Man vermischt 90 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 1.001 mit 10 Gewichtsteilen N-Methyl-α-pyrrolidon und erhält eine Lösung, die zur Anwendung in Form kleinster Tropfen geeignet ist.
- II. 20 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 4.003 werden in einer Mischung gelöst, die aus 80 Gewichtstei-

5

10

15

20

25

30

40

45

50

55

len Xylol, 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 8 bis 10 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ölsäure-N-monoethanolamid, 5 Gewichtsteilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure und 5 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Ausgießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0.02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.

- III. 20 Gewichtsteile der Verbindung Nr. 1.001 werden in einer Mischung gelöst, die aus 40 Gewichtsteilen Cyclohexanon, 30 Gewichtsteilen Isobutanol, 20 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 7 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Isooctylphenol und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.
- IV. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden in einer Mischung gelöst, die aus 25 Gewichtsteilen Cyclohexanon, 65 Gewichtsteilen einer Mineralölfraktion vom Siedepunkt 210 bis 280°C und 10 Gewichtsteilen des Anlagerungsproduktes von 40 Mol Ethylenoxid an 1 Mol Ricinusöl besteht. Durch Eingießen und feines Verteilen der Lösung in 100 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine wäßrige Dispersion, die 0,02 Gew.% des Wirkstoffs enthält.
- V. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1.001 werden mit 3 Gewichtsteilen des Natriumsalzes der Diisobutylnaphthalin-α-sulfonsäure, 17 Gewichtsteilen des Natriumsalzes einer Ligninsulfonsäure aus einer Sulfit-Ablauge und 60 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel gut vermischt und in einer Hammermühle vermahlen. Durch feines Verteilen der Mischung in 20 000 Gewichtsteilen Wasser erhält man eine Spritzbrühe, die 0,1 Gew.% des Wirkstoffs enthält.
- VI. 3 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 1.001 werden mit 97 Gewichtsteilen feinteiligem Kaolin vermischt. Man erhält auf diese Weise ein Stäubemittel, das 3 Gew.% des Wirkstoffs enthält.
- VII. 30 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden mit einer Mischung aus 92 Gewichtsteilen pulverförmigem Kieselsäuregel und 8 Gewichtsteilen Paraffinöl, das auf die Oberfläche dieses Kieselsäuregels gesprüht wurde, innig vermischt. Man erhält auf diese Weise eine Aufbereitung des Wirkstoffs mit guter Haftfähigkeit.
- VIII. 20 Gewichtsteile des Wirkstoffs Nr. 4.003 werden mit 2 Gewichtsteilen Calciumsalz der Dodecylbenzolsulfonsäure, 8 Gewichtsteilen Fettalkohol-polyglykolether, 2 Gewichtsteilen Natriumsalz eines Phenol-Harnstoff-Formaldehyd-Kondensates und 68 Gewichtsteilen eines paraffinischen Mineralöls innig vermischt. Man erhält eine stabile ölige Dispersion.

Die Applikation der herbiziden und wachstumsregulierenden Mittel bzw. der Wirkstoffe kann im Vorauflauf- oder im Nachauflaufverfahren erfolgen. Sind die Wirkstoffe für gewisse Kulturpflanzen weniger verträglich, so können Ausbringungstechniken angewandt werden, bei welchen die herbiziden Mittel mit Hilfe der Spritzgeräte so gespritzt werden, daß die Blätter der empfindlichen Kulturpflanzen nach Möglichkeit nicht getroffen werden, während die Wirkstoffe auf die Blätter darunter wachsender unerwünschter Pflanzen oder die unbedeckte Bodenfläche gelangen (post-directed, lay-by).

Die Aufwandmengen an Wirkstoff bei Anwendung als Herbizide betragen je nach Bekämpfungsziel, Jahreszeit, Zielpflanzen und Wachstumsstadium 0,001 bis 3, vorzugsweise 0,01 bis 2 kg/ha aktive Substanz (a.S.).

In Anbetracht des erfaßbaren Wirkungsspektrums zur Unkrautbekämpfung, der Verträglichkeit für Kulturpflanzen oder der erwünschten Beeinflussung des Wachstums derselben sowie angesichts der Vielfalt der Applikationsmethoden können die erfindungsgemäßen Verbindungen in einer großen Zahl von Kulturpflanzen eingesetzt werden. In Betracht kommen beispielsweise folgende Kulturen:

	Botanischer Name	Deutscher Name
	Allium cepa	Küchenzwiebel
_	Ananas comosus	Ananas
5	Arachis hypogaea	Erdnuß
	Asparagus officinalis	Spargel
	Beta vulgaris spp. altissima	Zuckerrübe
	Beta vulgaris spp. rapa	Futterrübe
10	Brassica napus var. napus	Raps
	Brassica napus var. napobrassica	Kohlrübe
	Brassica rapa var. silvestris	Rübsen
	Camellia sinensis	Teestrauch
15	Carthamus tinctorius	Saflor - Färberdistel
	Carya illinoinensis	Pekannuβbaum
	Citrus limon	Zitrone
	Citrus sinensis	Apfelsine, Orange
20		•

	Botanischer Name	Deutscher Name
	Coffea a <u>r</u> abica (Coffea canephora, Coffea liberica)	Kaffee
5	Cucumis sativus	Gurke
	Cynodon dactylon	Bermudagras
	Daucus carota	Möhre
	Elaeis guineensis	Ölpalme
10	Fragaria vesca	Erdbeere
	Glycine max	Sojabohne
	Gossypium hirsutum (Gossypium arboreum, Gossypium herbaceum, Gossypium vitifoliu	Baumwolle m)
15	Helianthus annuus	Sonnenblume
73	Hevea brasiliensis	Parakautschukbaum
	Hordeum vulgare	Gerste
	Humulus lupulus	Hopfen
	Ipomoea batatas	Süβkartoffeln
20	Juglans regia	Walnußbaum
	Lens culinaris	Linse
	Linum usitatissimum	Faserlein
	Lycopersicon lycopersicum	Tomate
25	Malus spp.	Apfel
	Manihot esculenta	Maniok
	Medicago sativa	Luzerne
	Musa spp.	Obst- und Mehlbanane
30	Nicotiana tabacum (N. rustica)	Tabak
	Olea europaea	Ölbaum
	Oryza sativa	Reis
	Phaseolus lunatus	Mondbohne
35	Phaseolus vulgaris	Buschbohne
	Picea abies	Rotfichte
	Pinus spp.	Kiefer
	Pisum sativum	Gartenerbse
40	Prunus avium	Süβkirsche Mandelbaum
40	Prunus dulcis	Pfirsich
	Prunus persica	Birne
	Pyrus communis	Rote Johannisbeere
	Ribes sylvestre	Rizinus
45	Ricinus communis	Zuckerrohr
	Saccharum officinarum	
	Secale cereale	Roggen Kartoffel
	Solanum tuberosum	Mohrenhirse
50	Sorghum bicolor (s. vulgare)	
•	Theobroma cacao	Kakaobaum

Botanischer Name	Deutscher Name					
Trifolium pratense	Rotklee					
Triticum aestivum	Weizen					
Triticum durum	Hartweizen					
Vicia faba	Pferdebohnen					
Vitis vinifera	Weinrebe					
Zea mays	Mais					

10

20

5

Zur Verbreiterung des Wirkungsspektrums und zur Erzielung synergistischer Effekte können die Verbindungen der Formel I sowohl untereinander als auch mit Vertretern anderer herbizider oder wachstumsregulierender Wirkstoffgruppen gemischt und gemeinsam ausgebracht werden. Beispielsweise kommen als Mischungspartner Diazin, 4H-3,1-Benzoxazinderivate, Benzothiadiazinone, 2,6-Dinitroaniline, N-Phenylcarbamate, Thiocarbamate, Halogencarbonsäuren, Triazine, Amide, Harnstoffe, Diphenylether, Triazinone, Uracile, Benzofuranderivate, Cyclohexan-1,3-dionderivate, Chinolincarbonsäurederivate, Sulfonylharnstoffderivate, (Hetero)-aryloxy-phenoxypropionsäuren, deren Salze, Ester und Amide und andere in Betracht.

Außerdem kann es von Nutzen sein, die Verbindungen I allein oder in Kombination mit anderen Herbiziden auch noch mit weiteren Pflanzenschutzmitteln gemischt gemeinsam auszubringen, beispielsweise mit Mitteln zur Bekämpfung von Schädlingen oder phytopathogenen Pilzen bzw. Bakterien. Von Interesse ist ferner die Mischbarkeit mit Mineralsalzlösungen, welche zur Behebung von Ernährungs- und Spurenelementmängeln eingesetzt werden. Es können auch nichtphytotoxische Öle und Ölkonzentrate zugesetzt werden.

Die folgenden Beispiele erläutern die Herstellung der Verbindungen I:

1. Herstellung der Verbindungen la und Ib

N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid

Zu 5,1 g (20 mmol) 5-tert.-Butylaminocarbonyl-3-isopropyl-isoxazol-4-carbonsäure in 200 ml Dichlormethan tropfte man bei -5° C nacheinander 7,5 g (74,1 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 17,4 g einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (27,3 mmol) in Dichlormethan und erhitzte anschließend 6 h unter Rückfluß. Man zog das Solvens im Vakuum ab, nahm den Rückstand in 300 ml Ethylacetat auf und extrahierte zweimal mit gesättigter Natriumhydrogencarbonatlösung sowie je einmal mit 5 %iger Zitronensäurelösung, gesättigter Natriumcarbonatlösung und gesättigter Natriumchloridlösung. Die organische Phase wurde getrocknet und das Solvens im Vakuum abgezogen. Man erhielt 4,1 g (87 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 60-62° C (Beispiel Nr. 1.003)

8,5 g (45,3 mmol) Chlormaleinsäure-tert. butylimid in 100 ml trockenem Toluol versetzte man bei 0°C mit 5,5 g (45,3 mmol) 2-Methyl-propyl-hydroxamylchlorid in 100 ml Toluol. Anschließend tropfte man bei 0°C 9,6 g (94,9 mmol) Triethylamin zu und rührte 12 h bei Raumtemperatur. Man filtrierte, extrahierte das Filtrat mit 10 %iger HCl, trocknete die organische Phase über Magnesiumsulfat und zog das Solvens im Vakuum ab. Man erhielt 7,9 g (74 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isoxazol-4,5-dicarboximid (Physikalische Daten s.o.)

N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isothiazol-4,5-dicarboximid

Zu 5,4 g (20 mmol) 5-tert.-Butylaminocarbonyl-3-isopropyl-isothiazol-4-carbonsäure in 200 ml Dichlormethan tropfte bei -5 °C nacheinander 7,5 g (74,1 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 17,4 g einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (27,3 mmol) in Dichlormethan und erhitzte anschließend 6 h unter Rückfluß. Die Aufarbeitung erfolgte wie voranstehend für Beispiel Nr. 1.003 angegeben. Man erhielt 4,8 g (95 %) N-tert.-Butyl-3-isopropyl-isothiazol-4,5-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 52-53 °C (Beispiel Nr. 3.001).

N-tert.-Butyl-5-methyl-isoxazol-3,4-dicarboximid

Zu 3,8 g (16,8 mmol) 3-tert.-Butylaminocarbonyl-5-methyl-isoxazol-4-carbonsäure in 150 ml Dichlormethan tropfte man bei -5 °C nacheinander 6,3 g (62,2 mmol) Methylmorpholin, 2,4 g (20 mmol) Dimethylaminopyridin und 14,6 g_einer 50 %igen Lösung von Propanphosphonsäureanhydrid (23 mmol) in Dichlormethan und erhitzte anschließend 6 h unter Rückfluß. Die Aufarbeitung erfolgte wie voranstehend angeben. Man erhielt 3,2 g (91 %) N-tert.-Butyl-5-methyl-isoxazol-3,4-dicarboximid als Feststoff vom Fp. 48-50 °C (Beispiel Nr. 2.001).

Analog können darüber hinaus beispielsweise weitere Verbindungen hergestellt werden mit den allgemeinen Strukturen

R1 N-R2

wobei X für Sauerstoff oder Schwefel, und beispielsweise R^1 für einen Rest aus der Gruppe Q_1 bis Q_{104} , R^2 für einen Rest aus der Gruppe M_1 bis M_{145} stehen und die Reste X, Q und M beliebig kombiniert werden können.

R¹ und R² können beispielsweise die folgenden Reste bedeuten:

Verb.	R ¹	Verb.	R ¹
Nr.		Nr.	
Q_1	н	Q42	1-Methylethoxymethy
Q ₂	F	Q43	Ethoxymethyl
Q ₃	Cl	944	Ethenyl
Q4	Methyl	Q45	1-Propenyl
Q ₅	Ethyl	Q46	2-Propenyl
Q6	Propyl	Q47	1-Methylethenyl
Q ₇	1-Methylethyl	Q48	1-Ethylethenyl
Q8	Butyl	949	2-Phenylethenyl
Q9	1-Methylpropyl	Q ₅₀	1-Butenyl
Q ₁₀	2-Methylpropyl	Q ₅₁	2-Butenyl
Q ₁₁	1,1-Dimethylethyl	Q52	3-Butenyl
Q ₁₂	Pentyl	Q53	1-Methyl-1-propenyl
Q ₁₃	1-Methylbutyl	Q54	1-Methyl-2-propenyl
Q14	2-Methylbutyl	Q55	2-Methyl-2-propenyl
Q ₁₅	3-Methylbutyl	Q56	2-Propinyl
Q ₁₆	1,1-Dimethylpropyl	Q57	Methoxy
Q ₁₇	1,2-Dimethylpropyl	Q58	Ethoxy
Q ₁₈	2,2-Dimethylpropyl	Q59	Propoxy
Q ₁₉	cyclo-Propyl	Q60	1-Methylethoxy
Q ₂₀	cyclo-Butyl	Q ₆₁	-Butoxy
Q ₂₁	cyclo-Pentyl	Q62	1-Methylpropoxy
Q ₂₂	cyclo-Hexyl	Q63	1,1-Dimethylethoxy
Q23	cyclo-Heptyl	Q ₆₄	Methylthio
Q24	cyclo-Octyl	Q65	Ethylthio
Q ₂₅	1-Methyl-cyclo-Propyl	Q66	Chlordifluormethoxy
Q ₂₆	cyclo-Propyl-methyl	Q67	Trifluormethoxy
Q27	1-(cyclo-Propyl)-ethyl	Q68	Trichlormethylthio
Q ₂₈	Chlormethyl	Q69	Phenyl
Q ₂₉	Dichlormethyl	Q70	2-Fluorphenyl
Q30	Trichlormethyl	Q71	3-Fluorphenyl

Nr.		Verb. R ¹	Verb. R ¹
Q31 Chlordiflormethy Q72 A-Fluorpheny Q32 Trifluormethy Q73 2-Chlorpheny Q34 Difluormethy Q74 3-Chlorpheny Q75 4-Chlorpheny Q76 2-Methylpheny Q76 2-Methylpheny Q76 2-Methylpheny Q77 3-Methylpheny Q77 3-Trifluorpheny Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylph		<u>Nr. – </u>	Nr.
Q31 Chlordiflormethy Q72 A-Fluorpheny Q32 Trifluormethy Q73 2-Chlorpheny Q34 Difluormethy Q74 3-Chlorpheny Q75 4-Chlorpheny Q76 2-Methylpheny Q76 2-Methylpheny Q76 2-Methylpheny Q77 3-Methylpheny Q77 3-Trifluorpheny Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylphoty Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Trifluorphenoxy Q77 3-Methylph			
Q32	3	Q ₃₁ Chlordifluormethyl	Q72 4-Fluorphenyl
Q34		Q ₃₂ Trifluormethyl	•
10		Q ₃₃ Pentafluorethyl	Q ₇₄ 3-Chlorphenyl
Q36 2-Chlorethyl Q77 3-Methylphenyl Q37 1-Methylphenyl Q38 1-Methyl-2-chlorethyl Q78 4-Methylphenyl Q38 1-Methyl-2-chlorethyl Q79 2-Trifluormethylphenyl Q39 Methoxymethyl Q80 3-Trifluorphenyl Q40 1-Methylmethoxymethyl Q81 4-Trifluorphenyl Q41 1-Methyl-2-methoxyethyl Q82 2-Methoxyphenyl Q41 1-Methyl-2-methoxyethyl Q82 2-Methoxyphenyl Q83 3-Methoxyphenyl Q84 4-Methoxyphenyl Q84 4-Methoxyphenyl Q84 4-Methoxyphenyl Q85 2,4-Dichlorphenyl M3 Propyl Q86 2,4-6-Trimethylphenyl M4 1-Methylethyl Q88 Phenylthio M6 1-Methylphenyl Q89 Phenoxy M7 2-Methylpropyl Q89 2-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q91 4-Chlorphenoxy M9 Pentyl Q92 2,4-Dichlorphenoxy M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M11 2-Methylbutyl Q93 Benzyl M12 3-Methylpropyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q94 2-Chlorbenzyl M12 3-Methylpropyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q95 3-Chlorbenzyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2,2-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q104 4-Pyridyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl Q104 4-Pyridyl M22 1,2-Dimethylbutyl Q25 2,2-Dimethylbutyl Q25 2,2-Dimethyl		Q ₃₄ Difluormethyl	Q75 4-Chlorphenyl
Q37	10	Q ₃₅ 1-Chlorethyl	Q76 2-Methylphenyl
Q38		Q ₃₆ 2-Chlorethyl	Q77 3-Methylphenyl
Q39 Methoxymethyl Q80 3-Trifluorphenyl Q40 1-Methylmethoxymethyl Q81 4-Trifluorphenyl Q41 1-Methyl-2-methoxyethyl Q82 2-Methoxyphenyl Q82 2-Methoxyphenyl Q82 2-Methoxyphenyl Q83 3-Methoxyphenyl Q84 4-Methoxyphenyl M2 Ethyl Q84 4-Methoxyphenyl M2 Ethyl Q85 2,4-Dichlorphenyl M3 Propyl Q86 2,4,6-Trimethylphenyl M4 1-Methylethyl Q87 Phenoxy M5 Butyl Q88 Phenylthio M6 1-Methylpropyl Q89 2-Chlorphenoxy M7 2-Methylpropyl Q90 3-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q91 4-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q92 2,4-Dichlorphenoxy M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M11 2-Methylbutyl Q93 Benzyl M12 3-Methylbutyl Q95 3-Chlorbenzyl M12 3-Methylpropyl Q96 4-Chlorbenzyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q96 4-Chlorbenzyl M14 1,2-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2,2-Dimethylpropyl Q98 3-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q101 3-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q103 3-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl Q104 4-Pyridyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylb		Q ₃₇ l-Methyl-1-chlorethyl	Q78 4-Methylphenyl
Q40		Q ₃₈ 1-Methyl-2-chlorethyl	Q79 2-Trifluormethylphenyl
Q40	15	Q ₃₉ Methoxymethyl	Q ₈₀ 3-Trifluorphenyl
Verb. R ¹ Verb. R ² Nr. Nr		Q ₄₀ l-Methylmethoxymethyl	Q ₈₁ 4-Trifluorphenyl
Nr. Nr. Nr.		Q ₄₁ l-Methyl-2-methoxyethyl	Q ₈₂ 2-Methoxyphenyl
Nr. Nr. Nr.		verb. R ¹	Verb. R ²
Q83 3-Methoxyphenyl	20		
Q84			
Q84		Qgg 3-Methoxyphenyl	M ₁ Methyl
25 Q85 2, 4-Dichlorphenyl M3 Propyl Q86 2, 4, 6-Trimethylphenyl M4 1-Methylethyl Q87 Phenoxy M5 Butyl Q88 Phenylthio M6 1-Methylpropyl Q89 2-Chlorphenoxy M7 2-Methylpropyl Q90 3-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q91 4-Chlorphenoxy M9 Pentyl Q92 2,4-Dichlorphenoxy M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M11 2-Methylbutyl 25 Q94 2-Chlorbenzyl M12 3-Methylbutyl Q95 3-Chlorbenzyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q96 4-Chlorbenzyl M14 1,2-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2,2-Dimethylpropyl Q98 3-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M17 Hexyl Q100 2-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q101 3-Thienyl M19 2-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q103 3-Pyridyl M21 4-Methylpentyl Q104 4-Pyridyl M22 1,1-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl			•
Q86 2, 4, 6-Trimethylphenyl M4 1-Methylethyl Q87 Phenoxy M5 Butyl Q88 Phenylthio M6 1-Methylpropyl Q89 2-Chlorphenoxy M7 2-Methylpropyl Q90 3-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q91 4-Chlorphenoxy M9 Pentyl Q92 2,4-Dichlorphenoxy M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M10 1-Methylbutyl Q94 2-Chlorbenzyl M12 2-Methylbutyl Q95 3-Chlorbenzyl M13 1,-Dimethylpropyl Q96 4-Chlorbenzyl M14 1,2-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2,2-Dimethylpropyl 40 Q98 3-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M17 Hexyl Q100 2-Thienyl M17 Hexyl Q101 3-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Met	25		
Q87 Phenoxy M5 Butyl		•	•
Q88 Phenylthio M6 1-Methylpropyl Q89 2-Chlorphenoxy M7 2-Methylpropyl Q90 3-Chlorphenoxy M8 1,1-Dimethylethyl Q91 4-Chlorphenoxy M9 Pentyl Q92 2,4-Dichlorphenoxy M10 1-Methylbutyl Q93 Benzyl M11 2-Methylbutyl 35 Q94 2-Chlorbenzyl M12 3-Methylbutyl Q95 3-Chlorbenzyl M13 1,1-Dimethylpropyl Q96 4-Chlorbenzyl M14 1,2-Dimethylpropyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2,2-Dimethylpropyl Q98 3-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M17 Hexyl Q100 2-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q101 3-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl Q103 3-Pyridyl M21 4-Methylpentyl Q104 4-Pyridyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		• •	•
Q89 2-Chlorphenoxy			_
Qg0 3-Chlorphenoxy Qg1 4-Chlorphenoxy Qg2 2,4-Dichlorphenoxy Qg3 Benzyl Mg Pentyl Qg3 Benzyl Mg0 1-Methylbutyl Qg3 Benzyl Mg1 2-Methylbutyl Qg5 3-Chlorbenzyl Qg6 4-Chlorbenzyl Qg7 2-Fluorbenzyl Qg7 2-Fluorbenzyl Qg8 3-Fluorbenzyl Qg9 4-Fluorbenzyl Qg9 4-Fluorbenzyl Qg100 2-Thienyl Qg101 3-Thienyl Qg102 2-Pyridyl Qg103 3-Pyridyl Qg104 4-Pyridyl Mg14 1,2-Dimethylpropyl Mg2 2,2-Dimethylpropyl Mg3 1,-Dimethylpropyl Mg4 1,3-Dimethylbutyl Mg5 2,2-Dimethylbutyl Mg7 1,3-Dimethylbutyl			
Q91 4-Chlorphenoxy	30		•
Q93 Benzyl Q94 2-Chlorbenzyl Q95 3-Chlorbenzyl Q96 4-Chlorbenzyl Q97 2-Fluorbenzyl Q98 3-Fluorbenzyl Q99 4-Fluorbenzyl Q100 2-Thienyl Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M15 2-Methylbutyl M12 3-Methylbutyl M14 1, 2-Dimethylpropyl M15 2, 2-Dimethylpropyl M16 1-Ethylpropyl M17 Hexyl M18 1-Methylpentyl M19 2-Methylpentyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1, 1-Dimethylbutyl M23 1, 2-Dimethylbutyl M24 1, 3-Dimethylbutyl M25 2, 2-Dimethylbutyl			Mg Pentyl
Q94 2-Chlorbenzyl Q95 3-Chlorbenzyl Q96 4-Chlorbenzyl Q97 2-Fluorbenzyl Q98 3-Fluorbenzyl Q99 4-Fluorbenzyl Q100 2-Thienyl Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M25 2, 2-Dimethylbutyl M27 4-Methylpentyl M29 1, 2-Dimethylbutyl M20 3-Dimethylbutyl M20 1, 3-Dimethylbutyl M21 1, 3-Dimethylbutyl M22 2, 2-Dimethylbutyl M23 1, 2-Dimethylbutyl M24 1, 3-Dimethylbutyl M25 2, 2-Dimethylbutyl		Q ₉₂ 2,4-Dichlorphenoxy	M ₁₀ 1-Methylbutyl
Q95 3-Chlorbenzyl Q96 4-Chlorbenzyl Q97 2-Fluorbenzyl Q98 3-Fluorbenzyl Q99 4-Fluorbenzyl Q100 2-Thienyl Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M20 1, 3-Dimethylbutyl Q104 4-Pyridyl M20 2, 2-Dimethylbutyl M20 3-Methylpentyl M20 1, 1-Dimethylbutyl M21 4-Dimethylbutyl M22 1, 1-Dimethylbutyl M23 1, 2-Dimethylbutyl M25 2, 2-Dimethylbutyl		Qg3 Benzyl	M ₁₁ 2-Methylbutyl
Q96 4-Chlorbenzyl Q97 2-Fluorbenzyl M15 2, 2-Dimethylpropyl M298 3-Fluorbenzyl M299 4-Fluorbenzyl M299 4-Fluorbenzyl M290 2-Thienyl M200 2-Thienyl M201 3-Thienyl M202 2-Pyridyl M203 3-Methylpentyl M203-Methylpentyl M204 4-Pyridyl M204 4-Pyridyl M205 2, 2-Dimethylbutyl M205 2, 2-Dimethylbutyl M206 3-Dimethylbutyl M207 3-Dimethylbutyl	35	Qg4 2-Chlorbenzyl	M ₁₂ 3-Methylbutyl
Q97 2-Fluorbenzyl Q98 3-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl Q99 4-Fluorbenzyl M17 Hexyl Q100 2-Thienyl M18 1-Methylpentyl Q101 3-Thienyl M19 2-Methylpentyl Q102 2-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl Q104 4-Pyridyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		Q ₉₅ 3-Chlorbenzyl	M ₁₃ 1,1-Dimethylpropyl
Q98 3-Fluorbenzyl Q99 4-Fluorbenzyl M16 1-Ethylpropyl M17 Hexyl Q100 2-Thienyl M18 1-Methylpentyl M19 2-Methylpentyl M20 3-Methylpentyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		Q ₉₆ 4-Chlorbenzyl	M ₁₄ 1,2-Dimethylpropyl
Q99 4-Fluorbenzyl Q100 2-Thienyl Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl Q102 3-Pyridyl Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		Qg7 2-Fluorbenzyl	M ₁₅ 2,2-Dimethylpropyl
Q99 4-Fluorbenzyl Q100 2-Thienyl Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl 45 Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl	40	Qgg 3-Fluorbenzyl	M ₁₆ 1-Ethylpropyl
Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl 45 Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl	40	Qgg 4-Fluorbenzyl	M ₁₇ Hexyl
Q101 3-Thienyl Q102 2-Pyridyl 45 Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M20 3-Methylpentyl M21 4-Methylpentyl M22 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		Q ₁₀₀ 2-Thienyl	M ₁₈ 1-Methylpentyl
Q103 3-Pyridyl Q104 4-Pyridyl M21 1,1-Dimethylbutyl M23 1,2-Dimethylbutyl M24 1,3-Dimethylbutyl M25 2,2-Dimethylbutyl		Q ₁₀₁ 3-Thienyl	M ₁₉ 2-Methylpentyl
Q ₁₀₄ 4-Pyridyl M ₂₂ 1,1-Dimethylbutyl M ₂₃ 1,2-Dimethylbutyl M ₂₄ 1,3-Dimethylbutyl M ₂₅ 2,2-Dimethylbutyl		Q ₁₀₂ 2-Pyridyl	M ₂₀ 3-Methylpentyl
Q ₁₀₄ 4-Pyridyl M ₂₂ 1,1-Dimethylbutyl M ₂₃ 1,2-Dimethylbutyl M ₂₄ 1,3-Dimethylbutyl M ₂₄ 1,3-Dimethylbutyl M ₂₅ 2,2-Dimethylbutyl	45		M ₂₁ 4-Methylpentyl
M ₂₃ 1,2-Dimethylbutyl M ₂₄ 1,3-Dimethylbutyl M ₂₅ 2,2-Dimethylbutyl			M ₂₂ 1,1-Dimethylbutyl
M25 2,2-Dimethylbutyl			M ₂₃ 1,2-Dimethylbutyl
30			M_{24} 1,3-Dimethylbutyl
M ₂₆ 2,3-Dimethylbutyl	50		
			M ₂₆ 2,3-Dimethylbutyl

verb. R ¹	Verb. R ²
Nr.	Nr.
	Mar 2 2 Dimakhulhukul
	M ₂₇ 3,3-Dimethylbutyl
	M ₂₈ 1-Ethylbutyl
	M ₂₉ 2-Ethylbutyl
	M ₃₀ 1,1,2-Trimethylpropyl
	M ₃₁ 1,2,2-Trimethylpropyl
	M ₃₂ 1-Ethyl-1-methylpropy
	M ₃₃ 1-Ethyl-2-methylpropy
	M ₃₄ cyclo-Propyl
	M ₃₅ cyclo-Butyl
	M ₃₆ cyclo-Pentyl
	M ₃₇ cyclo-Hexyl
	M ₃₈ cyclo-Heptyl
	M ₃₉ cyclo-Octyl
	M ₄₀ 1-Methyl-cyclo-Propyl
Verb. R ²	Verb. R ²
Nr.	Nr.
M ₄₁ cyclo-Propyl-methyl	M ₈₀ 4-Methylphenyl
M ₄₂ 1-(cyclo-Propyl)-ethyl	M ₈₁ 2-Ethylphenyl
M43 1-Methylcyclohexyl	M ₈₂ 3-Ethylphenyl
M ₄₄ 1-Ethylcyclohexyl	M83 4-Ethylphenyl
M ₄₅ Cyclohexylmethyl	M84 2,3-Dimethylphenyl
M ₄₆ 2-Propenyl	M ₈₅ 2,4-Dimethylphenyl
M ₄₇ 1-Methyl-2-propenyl	M ₈₆ 2,5-Dimethylphenyl
M48 1,1-Dimethyl-2-propenyl	M ₈₇ 2,6-Dimethylphenyl
M ₄₉ 2-Propinyl	M88 3,4-Dimethylphenyl
M ₅₀ 1-Methyl-2-propinyl	Mgg 3,5-Dimethylphenyl
M ₅₁ 1,1-Dimethylpropinyl	MgO 2,3,4-Trimethylphenyl
M52 Phenylmethyl	Mg1 2,3,5-Trimethylphenyl
-	Mg2 2,4,5-Trimethylphenyl
M53 1-Methylphenylmethyl	Mg3 2,4,6-Trimethylphenyl
M ₅₄ 1,1-Dimethylphenylmethyl	Mg/L 3,4,5-Trimethylphenyl
M55 2-Phenylethyl	Mos 2-Trifluormethylpheny
M ₅₆ 2-Methylthioethyl	Mg6 3-Trifluormethylpheny
M57 1-Methyl-2-methylthioethyl	Mg7 4-Trifluormethylpheny
M ₅₈ 1,1-Dimethyl-2-methylthioethyl	Mgg 2-Fluorphenyl
M ₅₉ 3-Methylthiopropyl	••
M ₆₀ 2-Fluorethyl	Mgg 3-Fluorphenyl
M ₆₁ 2-Fluor-1-methylethyl	M ₈₈ 3,4-Dimethylphenyl
M ₆₂ 1,1-Dimethyl-2-fluorethyl	M89 3,5-Dimethylphenyl
M ₆₃ 2-Chlorethyl	M ₉₀ 2,3,4-Trimethylpheny

Verb. R ²	Verb. R2
Nr.	Nr.
Ma. 2 Chlam I mathulathul	
M ₆₄ 2-Chlor-1-methylethyl	Mg1 2,3,5-Trimethylphenyl
M ₆₅ 2-Chlor-1,1-dimethylethyl	Mg2 2,4,5-Trimethylphenyl
M ₆₆ 2-Methoxyethyl	Mgg 2,4,6-Trimethylphenyl
M ₆₇ 2-Methoxy-1-methylethyl	Mg4 3,4,5-Trimethylphenyl
M ₆₈ 1, 1-Dimethyl-2-methoxyethyl	Mg5 2-Trifluormethylphenyl
M ₆₉ 3-Methoxypropyl	Mg6 3-Trifluormethylpheny
M ₇₀ 2-Cyanoethyl	Mg7 4-Trifluormethylpheny
M ₇₁ 2-Cyano-1-methylethyl	Mgg 2-Fluorphenyl
M ₇₂ 2-Cyano-1,1-dimethylethyl	Mgg 3-Fluorphenyl
M73 Dimethylamino	M ₁₀₀ 4-Fluorphenyl
M74 Diethylamino	M ₁₀₁ 2-Chlorphenyl
M75 Morpholino	M ₁₀₂ 3-Chlorphenyl
M76 Piperidino	M ₁₀₃ 4-Chlorphenyl
M77 Phenyl	M ₁₀₄ 2,3-Difluorphenyl
M78 2-Methylphenyl	M ₁₀₅ 2,4-Difluorphenyl
M ₇₉ 3-Methylphenyl	M ₁₀₆ 2,5-Difluorphenyl
Verb. R ²	
Nr.	
M ₁₀₇ 2,6-Difluorphenyl	
M ₁₀₈ 2, 3-Dichlorphenyl	
M ₁₀₉ 2,4-Dichlorphenyl	
M ₁₁₀ 2,5-Dichlorphenyl	
M ₁₁₁ 2,6-Dichlorphenyl	
M ₁₁₂ 2,3,4-Trichlorphenyl	
M ₁₁₃ 2, 3, 5-Trichlorphenyl	
M ₁₁₄ 2, 4, 6-Trichlorphenyl	
M ₁₁₅ 3, 4, 5-Trichlorphenyl	
M ₁₁₆ 2-Cyanophenyl	
M ₁₁₇ 3-Cyanophenyl	
M ₁₁₈ 4-Cyanophenyl	
M ₁₁₉ 2-Methoxyphenyl	
M ₁₂₀ 3-Methoxyphenyl	
M ₁₂₁ 4-Methoxyphenyl	
M ₁₂₂ 2,3-Dimethoxyphenyl	
M ₁₂₃ 2,4-Dimethoxyphenyl	
M ₁₂₄ 2,5-Dimethoxyphenyl	
M ₁₂₅ 2,6-Dimethoxyphenyl	
M ₁₂₆ 3,4-Dimethoxyphenyl	
M ₁₂₇ 3,5-Dimethoxyphenyl	

```
R<sup>2</sup>
            Verb.
            Nr.
            M_{128} 3, 4, 5-Trimethoxyphenyl
            M_{129} 2-Trifluormethoxyphenyl
            M_{130} 3-Trifluormethoxyphenyl
            M_{131} 4-Trifluormethoxyphenyl
            M<sub>132</sub> 2-Nitrophenyl
10
            M<sub>133</sub> 3-Nitrophenyl
            M<sub>134</sub> 4-Nitrophenyl
            M_{135} 2,3-Dinitrophenyl
             M<sub>136</sub> 2,4-Dinitrophenyl
15
             M<sub>137</sub> 2,5-Dinitrophenyl
             M<sub>138</sub> 2,6-Dinitrophenyl
            M<sub>139</sub> 3,4-Dinitrophenyl
             M_{140} 3,5-Dinitrophenyl
             M<sub>141</sub> 1-Naphthyl
20
             M<sub>142</sub> 2-Naphthyl
             M<sub>143</sub> 3-Tetrahydrofuryl
             M<sub>144</sub> 4-Tetrahydropyranyl
             M<sub>145</sub> 2-Thiazolyl
25
            Tabelle 1
30
35
                                                                        physik. Daten
             Bsp.
                                                 R<sup>2</sup>
                              R^{1}
                                                                            Fp.[°C],
             Nr.
                                                                       1<sub>H-NMR</sub> (250 MHz, CDC1<sub>3</sub>)
                                                                               [8 in ppm]
40
                                                                                 48-50
                                                  tert.-Butyl
             1.001
                            Methyl
                                                                                  58-60
             1.002
                                                  cyclo-Propyl
                            Ethyl
                                                                                  60-62
                                                  tert.-Butyl
             1.003
                            iso-Propyl
45
                                                                            1.00(t;3H), 1.63(s;9H),
                                                  tert.-Butyl
             1.004
                            n-Propyl
                                                                            1.84(m;2H), 2.76(t;2H)
                                                                                  35-38
             1.005
                            cyclo-Propyl
                                                  tert.-Butyl
                                                                            0.82-1.10(m;4H),
                                                  cyclo-Propyl
              1.006
                            iso-Propyl
                                                                            3.24(sept; 1H)
50
```

	Bsp. Nr.	R ¹	R ²	physik. Daten Fp.[°C],
				H-NMR (250 MHz, CDC1 ₃)
5				[8 in ppm]
	1.007	CH2=C(C2H5)-	cyclo-Propyl	95-96
	1.008	сн3-сн(с1)-	cyclo-Propyl	0.90-1.08(m;4H),
10				1.97(d;3H), 2.62(m;1H),
				5.20(q;1H)
	1.009	cyclo-Propyl	cyclo-Propyl	89-90
15	1.010	iso-Propyl	4-Chlorphenyl	80-82
	Tabelle 2			
			0	
20		R1		
		1	N-R ²	•
			· I	
25				
	Bsp.	~•		physik. Daten
	Nr.	R ¹	R ²	Fp.[ºC],
			1	H-NMR (250 MHz, CDCl ₃)
30				[ø in ppm]
	2.001	Methyl	tertButyl	48-50
	2.002	n-Propyl	tertButyl	48-49
35	2.003	iso-Propyl	tertButyl	35-36
	2.004	cyclo-Propyl	cyclo-Propyl-met	
	2.005	cyclo-Propyl	Benzyl	72-77
	2.006	cyclo-Propyl	-CH ₂ -CH ₂ -O-CH ₃	1.00-1.45 (m;4 H);
40				2.32 (m; 1H),
-				3,34 (s; 3H),
				3,60 (t; 2H)
				3,84 (t; 2H)
45	2.007	Methyl .	cyclo-Butyl	55-60
45	2.008	Methyl	-C (CH ₃) ₂ -C ₂ H ₅	0,86 (t; 3H),
	2.000	ne city t	0 (0H3) 2-0 2H5	1,63 (s; 6H),
				1,97 (g; 2H),
				2,66 (s; 3H)
50	2.009	Methyl	-CH ₂ -C(CH ₃) ₃	2,00 (s; 5h) 84-91
	2.009	metnyt	-cn2-c(cn3/3	04-31

	Bsp. Nr.	_ R1	R ²	physik. Daten Fp.[°C],
			•	1 H-NMR (250 MHz, CDC1 ₃)
5				[8 in ppm]
	2.010	Methyl	sekButyl	0,88 (t; 3H),
				1,34 (d; 3H)
				1,65-2.10 (m; 2H)
10				2,68 (s; 3H)
				4,20 (m; 1H)
	2.011	Methyl	cyclo-Pentyl	71-78
	2.012	iso-Propyl	cyclo-Propyl	70-73
15				

Tabelle 3

physik. Daten Bsp. R^2 R1 Fp.[°C] Nr. 52- 53 3.001 iso-Propyl tert.-Butyl 3.002 iso-Propyl 4-Cl-Phenyl 99-100 3.003 Ethyl 4-Cl-Phenyl 121-123 3.004 Pheny l 4-C1-Phenyl 146-147

35

20

25

30

- 2. Herstellung von Vorprodukten für die Verbindungen lc.
- 4(5)-t-Butylamino-carbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure
- 40 4(5)-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure

Eine Lösung von 51.8 g (0.213 mol) 2-Methylthiazol-4,5-dicarbonsäure-diethylester in 300 ml Ethanol wurde bei 0°C tropfenweise mit einer Lösung von 8.5 g (0.213 mol) Natriumhydroxid in 100 ml Wasser versetzt. Man ließ 12 Stunden bei Raumtemperatur rühren, entfernte dann das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand in 100 ml Ether und 200 ml Wasser auf, trennte die Phasen und säuerte die wäßrige Phase mit konz. HCl auf pH 1 an. Das ölig ausfallende Produkt wurde durch Extraktion mit CH₂Cl₂ isoliert. Ausbeute: 34.8 g (76 %) als 3:2-Isomerengemisch.

4-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäure (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.50 (t, J = 7 Hz; 3 H), 2.80 (s; 3 H), 4.62 (q, J = 7 Hz; 2 H), 13.50 (s, 1 H).

5-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäure (Nebenkomponente)

 $_{5}$ ¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) $_{\delta}$ = 1.52 (t, J = 7 Hz; 3 H), 2.82 (s; 3 H), 4.53 (q, 2 H), 13.50 (s, 1 H).

4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäureethyl-ester

Eine Lösung von 8 g (37.2 mmol) 4(5)-Ethoxycarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure in 50 ml Toluol wurde mit 3.20 g (40.9 mmol) Pyridin versetzt. Man rührte 30 Minuten nach und tropfte dann 4.70 g (39.8 mmol) Thionylchlorid_zu. Die erhaltene Mischung wurde 2 h bei 60 °C gerührt, dann auf 0 °C gekühlt und mit 8 g (110 mmol) t-Butylamin versetzt. Man rührte 12 h bei Raumtemperatur nach, entfernte das Lösungsmittel im Vakuum und nahm den Rückstand mit 100 ml Ether und 50 ml Wasser auf. Man extrahierte nochmals mit 100 ml Ether, trocknete die vereinten Extrakte und entfernte das Lösungsmittel. Als Rückstand bleiben 9.70 g (97 %) Produkt als Kristallbrei. (3:2-Isomerengemisch).

5-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäureethylester (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.45 (t, 3 H), 1.45 (s; 3 H), 2.71 (s; 3 H), 4.50 (q, J = 7 Hz; 2 H), 9.95 (s; 1 H).

4-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäureethylester (Nebenkomponente)

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.37 (t, 3 H), 1.45 (s; 9 H), 2.71 (s, 3 H), 4.38 (q, 2H), 7.84 (s; 1H).

4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure

10

15

20

45

55

Eine Lösung von 9.70 g (35.9 mmol) 4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäureethylester in 100 ml Ethanol wurde mit 1.70 g (43.1 mmol) Natriumhydroxid in 20 ml Wasser versetzt. Man erhitzte zwei Stunden zum Rückfluß, entfernte das Lösungsmittel dann im Vakuum und nahm den Rückstand mit 100 ml Wasser und 50 ml Ether auf. Die Phasen wurden getrennt, die wäßrige Phase mit 10%iger Salzsäure auf pH 1 gebracht und das ausgefallene Produkt (3:2-Isomerengemisch) abgesaugt und getrocknet. Ausbeute: 6.60 g (74 %) Fp.: 125-129 °C.

5-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-4-carbonsäure (Hauptkomponente)

¹H-NMR (CDCI₃, 250 MHz) δ = 1.45 (s, 9 H), 2.68 (s; 3 H), 8.00 (s; 1 H), 16.75 (s, 1 H).

4-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5-carbonsäure (Nebenkomponente)

¹H-NMR (CDCI₃, 250 MHz) δ = 1.52 (s, 9 H), 2.73 (s; 3 H), 10.00 (s; 1 H), 16.75 (s, 1 H).

4-Cyclopropylaminocarbonyl-2-(1-methylethyl)-oxazol-5-carbonsäure

Zu einer Lösung von 10.4 g (0.054 mol) 2-(1-Methylethyl)-oxazol-4-carbonsäurecyclopropylamid in 250 ml Tetrahydrofuran tropfte man unter Stickstoffatmosphäre bei -70° C 0.12 mol n-Butyllithium (80.0 ml einer 1.5 molaren Lösung in Hexan) und rührte 30 min bei dieser Temperatur. Anschließend goß man das Reaktionsgemisch auf 500 g festes CO₂ und ließ über Nacht stehen. Man engte ein, nahm den Rückstand in 200 ml Wasser und 30 ml 10 %iger NaOH auf, extrahierte zweimal mit Diethylether, säuerte die wäßrige Phase mit konz. Salzsäure auf pH 2 an und extrahierte mit Ethylacetat. Man trocknete über Magnesiumsulfat und zog das Solvens im Vakuum ab. Man erhielt 10.4 g (81 %) 4-Cyclopropylaminocarbonyl-2-(1-methylethyl)-oxazol-5-carbonsäure als weißes Pulver vom Fp. 109 bis 112° C.

4-tert.-Butylaminocarbonyl-2-methoxythiazol-5-carbonsäure

Zu einer Lösung von 8.00 g (37 mmol) 2-Methoxythiazol-4-carbonsäuretert.-butylamid in 150 ml Tetrahydrofuran tropfte man bei -70 °C 65 ml einer 1.5 m Lösung (97 mmol) von n-Butyllithium in n-Hexan und rührte 30 Minuten bei dieser Temperatur. Anschließend goß man das Reaktionsgemisch auf 500 g festes Kohlendioxid und ließ innerhalb von 14 Stunden auf Raumtemperatur erwärmen. Man entfernte das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand in einer Mischung aus 150 ml Wasser und 16 ml 2 m Natronlauge auf, filtrierte, säuerte das Filtrat mit konzentrierter Salzsäure an und saugte die ausgefallene Carbonsäure ab.

Man erhielt 7.8 g (82 %) 4-tert.-Butylaminocarbonyl-2-methoxy-thiazol-5-carbonsäure als weißes Pulver vom Fp.: 120 bis 122 °C.

3. Herstellung der Oxazol- bzw. Thiazol-4,5-dicarbon-säureimide lc

N-t-Butyl-2-methylthiazol-4,5-dicarbonsäureimid

6.60 g (27.3 mmol) 4(5)-t-Butylaminocarbonyl-2-methylthiazol-5(4)-carbonsäure wurden in 20 ml Pyridin gelöst, mit 6.20 g (32.7 mmol) p-Toluolsulfonsäurechloridversetzt und 12 h bei Raumtemperatur gerührt. Man entfernte das Lösungsmittel im Vakuum, nahm den Rückstand mit CH₂Cl₂ und Wasser auf, trennte die Phasen, wusch die organische Phase nacheinander mit 10%iger HCl, gesättigter NaHCO₃-Lösung, Wasser und trocknete. Der nach dem Entfernen des Lösungsmittels verbliebene Rückstand wurde durch Filtration über Kieselgel (Elutionsmittel: CH₂Cl₂) gereinigt.

Ausbeute: 5.20 g (85 %) Fp.: 106 °C (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.013).

¹H-NMR (250 MHz, CDCl₃) δ = 1.65 (s; 9 H), 2.89 (s; 3 H).

N-(3-Trifluormethylphenyl)-2-(1-methylethyl)thiazol-4,5-dicarbonsäureimid

11.5 g (37 mmol) 4(5)-(3-Trifluormethylanilino)carbonyl-2-(1-methylethyl)-thiazol-5(4)-carbonsäure wurde in 100 ml Pyridin gelöst und bei 0°C mit 8.5 g (44.5 mmol) p-Toluolsulfonsäurechlorid versetzt. Man ließ auf Raumtemperatur erwärmen und erhitzte dann noch zwei Stunden auf 60°C. Das Lösungsmittel wurde im Vakuum entfernt, der Rückstand in CH₂Cl₂ und Wasser aufgenommen, die Phasen getrennt, die wäßrige Phase noch einmal mit CH₂Cl₂ extrahiert und die vereinten Extrakte nacheinander mit 10%iger HCl, gesättigter NaHCO₃-Lösung und Wasser gewaschen. Man trocknete über Na₂SO₄, engte das Gemisch ein und reinigte den verbliebenen Rückstand durch Filtration über Kieselgel (Elutionsmittel: CH₂Cl₂). Ausbeute: 10.65 g (84 %) Produkt vom Fp.: 80°C (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.015).

¹H-NMR (CDCl₃, 250 MHz) δ = 1.52 (d, 6 H), 3.50 (sept.; 1 H), 7.55-7.75 (m; 3H).

N-t-Butyl-2-methoxythiazol-4,5-dicarbonsäureimid

In eine Lösung von 2.6 g (10 mmol) 4-t-Butylaminocarbonyl-2-methoxythiazol-5-carbonsäure (Beispiel 1.3) in 100 ml CH_2Cl_2 gab man bei -5 $^{\circ}$ C nacheinander 3.75 g (37.1 mmol) N-Methylmorpholin, 1.20 g (10 mmol) 4-N,N-Dimethylaminopyridin und 8.70 g einer 50%igen Lösung (13.7 mmol) von Propanphosphonsäureanhydrid in CH_2Cl_2 . Man erhitzte 6 h zum Rückfluß, entfernte dann das Lösungsmittel und nahm den Rückstand mit Essigester auf. Man extrahierte zweimal mit gesättigter Natriumhydrogencarbonatlösung sowie einmal mit 5%iger Zitronensäurelösung; wusch mit Wasser und trocknete über MgSO₄. Nach Entfernen des Lösungsmittels reinigte man das Rohprodukt durch Chromatographie an Kieselgel (Elutionsmittel: Cyclohexan/Essigester = 1:1) und erhielt so 1.20 g (50 %) Produkt vom Schmelzpunkt 63-66 $^{\circ}$ C (Wirkstoffbeispiel Nr. 4.014).

Die in den nachfolgenden Tabellen 4 und 5 aufgeführten Verbindungen wurden analog zu den voranstehenden Beispielen hergestellt:

50

25

35

40

45

5н)

5 10 15		Fp (°C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)	72-74	1.61 (s; 9H), 1.82 (d; 3H), 4.54 (q; 1H), 7.24-7.42 (m;	78	51-52	116	92	123	83-84	115	86
20		*	S	v	S	S	S	S	S	S	s	S
25	.NR 2	R ²	1,1-Dimethylethyl	l,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	l,l-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl
35 40		м ₁	Benzyl	l-Phenylethyl	cyclo-Propyl	1-Methoxymethyl	l,1-Dimethylethyl	4-Fluorbenzyl	3,4,5-Trimethoxybenzyl	2-Phenylethyl	Phenyl	l-Methylethyl
45	Tabelle 4	ř.	4.001	4.002	4.003	700.4	4.005	900.4	4.007	800.4	600.4	4.010
50												

_														; 2H)	; 9H)
5			ĺ						H).		Ĩ,			.05 (s	.65 (s
10		250 MHz)							2.95 (s; 3H), 7.55-7.75 (m; 4H).		1.00 (d; 6H), 2.20 (nonett; 1H),	9н), 3.00 (d; 2н).		1.65 (s; 9H), 2.20 (s; 3H), 4.05 (s; 2H)	0.95 (t; 3H), 1.45 (m; 2H), 1.1 1.85 (sext; 2H), 3.15 (t; 2H).
		Fp (^O C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)		91	141-143	105-107	99		5 (s; 3H), 7	0	0 (d; 6H), 2	1.66 (s; 9H), 3		5 (s; 9H), 2	5 (t; 3H), 1 5 (sext; 2H)
20		Γρ 1+		90-91	141	105	99-69	8	2.9	>250	1.0	1.6	70	1.6	0.9
		,×		S	S	S	S	s L	s L	S	S		S	S	S
30				1,1-Dimethylethyl	l,l-Dimethylethyl	l,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	3-Trifluormethylphenyl	3-Trifluormethylphenyl	4-Pheny lpheny l	1,1-Dimethylethyl		loxy	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl
35 ·		R2		1,1-	1,1-	1,1-	1,1	3-Tr	3-Tr	1d-7	1,1-		Methoxy	1,1-	1,1-
40	setzung)				noxypheny1		ху	hylethyl		_	hylpropyl		hylethyl	lthiomethyl	
45	Tabelle 4 (Fortsetz	R ₁		I	4-Phenox	Methyl	Methoxy	1-Methyl	Methyl	Methyl	2-Methyl		1-Methyl	Methylthi	Butyl
50	Tabelle	Ž.		4.011	4.012	4.013	4.014	4.015	4.016	4.017	4.018		4.019	4.020	4.021

5		-	ĺ						2.90 (s; 3H),			3.30 (s; 3H)	, (
10		250 MHz)							210 (s; 3H), 2.90 (s; 3H),			2,90 (s; 3H),	ABX-System; 2h	1H)							
15 20		Fp (^O C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)	66-26	1111	80-81	45-44	129	113-115	1.75 (s; 6H),	3.15 (s; 2H)	147	1.40 (d; 3H), 2,90 (s; 3H), 3.30 (s; 3H)	3.50 u. 3.90 (ABX-System; 2H),	4.40-4.60 (m; 1H)	182	84	9†	77-67	113	99	86
		×	S	S	S	S	S	S	S		S	s			s	S	s	S	s	S	S
25		R ²	Methyl	Cyclopropyl	1-Methylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1,1-Dimethylethyl	1-Methyl-2-thiomethylpropyl		2, 2, 2-Trifluorethyl	2-Methoxy-1-methylethyl			4-Chlor-phenyl	Dimethylamino	1,1-Dimethyl-2-propinyl	Cyclopropyl	Benzyl.	Cyclo-Propylmethyl	2-Propenyl
35									1-Me								1,				
45	Tabelle 4 (Fortsetzung)	R	Methyl	Methyl	Methyl	Propyl	2-Pyridyl	Methylsulfonylmethyl	Methyl		Methyl	Methyl			Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methy}
50	Tabelle	N.	4.022	4.023	4.024	4.025	4.026	4.027	4.028		4.029	4.030			4.031	4.032	4.033	4.034	4.035	4.036	4.037

Ri Methyi Methyi Methyi Methyi Methyi Methyi Methyi Methyi Methyi	Tabelle 4 (Fortsetzung)
--	-------------------------

5		_				(s; 2H).				(s; 2H).				(m; 4H),		S; 3H),	(m; 1H).			
			ĺ			2.00				3.10				2.50		2.90	4.40	ЗН),	3н),	
10		HZ)				(s; бн),				(s; 3н),				(m; 4H),	(s; 3H)	1.45 (d; 3H), 2.90 (s; 3H),	3.80 (dd; 1H), 4.40 (m; 1H).	1.55 (d; 3H),	2.95 (s; 3H),	
15		3, 250 M				1, 1.85	_			1), 2.90				1), 1.95	1), 2.95				1H),	1H).
20		Fp (^O C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 MHz)	177-178	106-108	197-198	1.00 (s; 9H), 1.85 (s; 6H), 2.00 (s; 2H).	2.90 (S; 3H) 132-134	>250	207	1.85 (s; 6H), 2.90 (s; 3H), 3.10 (s; 2H).	73-75	82	127	1.05 (t; 6H), 1.95 (m; 4H), 2.50 (m; 4H),	2.60 (s; 1H),	1.10 (s; 9H),	3.65 (m; 1H),	0.15-0.85 (m; 4H),	1.55-1.65 (m;	3.25-3.50 (m;
25		×	S	S	S	S	S	S	S	S	ග	S	S	S		s		S		
30			2-(1, 3, 4-Thiadiazolyl)	lnyl	3-Sulfolanyl	1,1,3,3-Tetramethyl-butyl	14	4-Thiomethylphenyl	8-chinolinyl	2-Cyano-1,1-dimethylethyl	3-Tetrahydrofuranyl	1-Cyano-1-methylethyl	2-(1, 4-Benzochinonyl)	3-Ethyl-pentin-3-yl		1-tertButoxy-propan-2-yl	•	1-Cyclopropyl-ethyl		
35		R ²	2-(1,3	1-Indany	3-Sul	1, 1, 3, 3-Te	Adamantv	4-Thic	8-chir	2-Cyano-1,	3-Tet	1-Cya	2-(1)	3-Eth		1-tertB		1-Cyc		
40	(Bun																			
45	Tabelle 4 (Fortsetzung)	R1	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Met to	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	•	Methyl	•	Methyl	•	
50	Tabelle	ŗ.	4.055	4.056	4.057	4.058	050	4.060	4.061	4.062	4.063	49.4	4.065	4.066		790.4		4.068		

# (Fortsetzung) # (For	4 5	45	40	35	30	25	20	15	5	
Methy 2,6-Dimethy -undeca- S 1.30-2.30 (m; 250 MHz) 2,6-Dimethy -undeca- S 1.30-2.30 (m; 20H), 2.90 (s; 2,6-dien-10-y 2,50-2.70 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.20-2.40 (m; 2H) 2-Methy 2,-Methy -pentan-2-y S 0.95 (t; 3H), 1.65 (s; 6H), 2,00 (g; 2H), 2.85 (s; 3H), 2-Heptany S 0.85 (t; 3H), 1.15-1.35 (m; 1H) 2,00 (g; 2H), 2.90 (s; 4.15-4.45 (m; 1H) 2,90 (s; 3H), 2-Methy 2-Methy -tetrahydropyran-4-y S 1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), 4-Methy 2-Methy -tetrahydropyran-2-y S 1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).	elle 4	· (Forts	etzung)							
Methyl 2,6-Dimethyl-undeca- S 1.30-2.30 (m; 20H), 2.90 (s 2,6-dien-10-yl 4.25 (m; 1H), 5.05 (m; 2H). Methyl 2-Methyl-4-phenyl-butan-2-yl S 1.70 (s; 6H), 2.20-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.70 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.70 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.70 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00 (g; 2H), 2.85 (s; 3H). Methyl 2-Heptanyl S 0.95 (t; 3H), 1.65-1.35 (m; 1H) Methyl Diphenylmethyl S 152 Methyl 4-Chlor-3-trifluormethyl- S 141 Methyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S 61 Methyl 3,4-Dichlorphenyl S 174-176 Methyl 2-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S 125 Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S 1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), Methyl 3.20 (s; 2H).		R 1		æ	7		×	Fp (^o C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ ,	250 MHz)	_
Methyl 2-Methyl-4-phenyl-butan-2-yl S 1.70 (s; 6H), 2.20-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 6H), 2.00-91 S 0.95 (t; 3H), 1.65 (s; 6H), 2.00 (g; 2H), 2.85 (s; 3H), 2.40 (g; 2H), 2.85 (s; 3H), 2.40 (g; 2H), 2.85 (s; 3H), 2.40 (g; 2H), 2.85 (s; 3H), 3.40 [g; 2H], 2.90 (s; 4.15-4.45 (m; 1H), 2.90 (s; 4.15-4.176 (m; 1H), 2.90 (s; 4.15-4.176 (m; 1H), 2.90 (s; 4.15-4.176 (m; 1H), 2.90 (s; 3H), 3.20 (s; 3H), 3.20 (s; 3H), 3.20 (s; 3H), 3.20 (s; 3H), 2.90 (s; 2H).	4.069	Methyl		2,6-01	methyl-und	eca-	S	1.30-2.30 (m;	20H), 2.90 (s	() ()
Methyl Cyclododecanyl S 90-91 Methyl 2-Methyl-pentan-2-yl S 0.95 (t; 3H), 1.65 (s; 6H), 2.85 (s; 3H). Methyl 2-Heptanyl S 0.85 (t; 3H), 1.15-1.35 (m; 11.5-1.35 (m; 11.40 (d; 3H), 1.15-1.35 (m; 11.40 (d; 3H), 1.15-1.75 (m; 1H) Methyl biphenyl S 14.1 Methyl 4-Chlor-3-trifluormethyl S 14.1 Methyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S 14.1 Methyl 3,4-Dichlorphenyl S 174-176 Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S 125 Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S 1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).	070	Methyl		2,0-41	y 1 – 4 – pheny	l-butan-2-yl		1.70 (s; 6H), 2.50-2.70 (m; 6.95-7.25 (m;	2.20-2.40 (m; 2H), 2.90 (s; 5H)	2H) 3H),
Methyl 2-Methyl-pentan-2-yl S 0.95 (t; 3H), 1.65 (s; 6H), Methyl 2-Heptanyl S 0.85 (t; 3H), 1.15-1.35 (m; Methyl Diphenylmethyl S 152 Methyl A-Chlor-3-trifluormethyl S 152 Methyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S 61 Methyl 3,4-Dichlorphenyl S 174-176 Methyl 2-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S 125 Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S 1.75 (s; 6H), 2.15 (s; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).	170	Methy]		J	yclododeca	nyl	s	16-06		
2-Heptanyl S 0.85 (t; 3H), 1.15-1.35 (m; 1.40 (d; 3H), 1.55-1.75 (m; 1.40 (d; 3H), 2.90 (s; 3H), 3.20 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).	4.072	Methyl		~	-Methyl-pe	ntan-2-yl	S	0.95 (t; 3H), 2.00 (g; 2H),	1.65 (s; 6H), 2.85 (s; 3H).	
Methyl biphenylmethyl S Methyl 4-Chlor-3-trifluormethyl S phenyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S Methyl 3,4-Dichlorphenyl S Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S Methyl 2-Methyl-5-91 S	073	Methyl			2-Heptanyl		vo .	0.85 (t; 3H), 1.40 (d; 3H), 1.95-2.10 (m; 4.15-4.45 (m;	1.15-1.35 (m; 1.55-1.75 (m; 1H), 2.90 (s; 1H)	6H), 1H), 3H),
Methyl 4-Chlor-3-trifluormethyl S phenyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S Methyl 3,4-Dichlorphenyl S Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S Methyl 2-Methyl-4-Oxo-pentan-2-yl S	740	Methyl)iphenylmet	hyl	S	152	•	
phenyl Bicyclo[3.3.0]octan-1-yl S Methyl 3,4-Dichlorphenyl S Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S	075	Methyl		4-Ch1	or-3-triflu	ormethyl-	S	141		•
Methyl 3,4-Dichlorphenyl S Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S Methyl 2-Methyl-4-Oxo-pentan-2-yl S	926	# 4 A		pheny	l 1o[3.3.01oc	tan-1-v]	S	61		
Methyl 4-Methyl-tetrahydropyran-4-yl S Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S	770	Methyl		3, 4-0	ichlorpheny	,	S	174-176		
Methyl 2-Methyl-4-0xo-pentan-2-yl S	078	Methyl		4-Meti	nyl-tetrahy	dropyran-4-y		125		
	610	Methyl		2-Meti	1y l -4-0x0-p	entan-2-yl	S	1.75 (s; 6H), 2.90 (s; 3H),	2.15 (s; 3H), 3.20 (s; 2H).	

			3H)	÷		(s; 3H)			
5			95 (s; ; 0 (m; 10	0 (m; 7	. (H	; 3H), , 2.90 (
10		1	2H), 2. iH), 4.5	.10-2.1	4.25 (m	1.60 (s (m; 3H)			
15) MHz)	0.95 (t; 3H), 1.70-2.15 (m; 2H), 2.95 (s; 3H) 3.75 und 4.10 (ABX-System; 2H), 4.50 (m; 1H).	100 0.80 (d; 3H), 0.85 (d, 3H), 1.10-2.10 (m; 7H),	1.45 (d; 3H), 2.40 (s; 3H), 4.25 (m; 1H). 78	1.45 (d, 3H), 1.55 (s; 3H), 1.60 (s; 3H), 1.65-180 (m; 1H), 1.90-2.15 (m; 3H), 2.90 (s; 3H), 4.20-4.35 (m; 1H), 5.00-5.15 (m; 1H).			
		13, 25(), 1.70 10 (AB)	9, 0.8), 2.4((), 1.59 (), 1H), (m; 1H),			
20		Fp (^O C) oder ¹ H-NMR (CDCl ₃ , 250 мнz)	(t; 3H und 4.	(a; 3H	(d; 3F	(d, 3H -180 (m -4.35 (138
		Fp (0.95 3.75	100	1.45 78	1.45	134	71	130-138
25		×	v	တ တ	S	S	S	S	0
30			n-2-y 1	Bicyclo[2.2.1]heptan-2-yl 6-Methyl-heptan-2-yl	yn-2-yl	t-5-en-2-y1	ethy1	an-2-yl	ethyl
35		R ²	1-Chlor-butan-2-yl	Bicyclo[2.2.1]heptan 6-Methyl-heptan-2-yl	3-Methyl-butyn-2-yl	6-Methyl-hept-5-en-2-yl	1,2-Diphenylethyl	Phenoxy-propan-2-yl	1,1-Dimethylethyl
40									
45	Tabelle 4 (Fortsetzung)	R1	Methyl	Methyl Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Methyl	Phenyl
50	Tabelle 4		4.080	4.081	4.083	780.7	4.085	4.086	4.087

55 Anwendungsbeispiele

Die herbizide Wirkung der Dicarbonsäureimide der Formeln la, Ib und lc ließ sich durch Gewächshausversuche zeigen:

Als Kulturgefäße dienten Plastikblumentöpfe mit lehmigem Sand mit etwa 3,0 % Humus als Substrat. Die Samen der Testpflanzen wurden nach Arten getrennt eingesät.

Bei Vorauflaufbehandlung wurden die in Wasser suspendierten oder emulgierten Wirkstoffe direkt nach Einsaat mittels fein verteilender Düsen aufgebracht. Die Gefäße wurden leicht beregnet, um Keimung und Wachstum zu fördern und anschließend mit durchsichtigen Plastikhauben abgedeckt, bis die Pflanzen angewachsen waren. Diese Abdeckung bewirkt ein gleichmäßiges Keimen der Testpflanzen, sofern dies nicht durch die Wirkstoffe beeinträchtigt wurde.

Zum Zwecke der Nachauflaufbehandlung wurden die Testpflanzen je nach Wuchsform erst bei einer Wuchshöhe von 3 bis 15 cm mit den in Wasser suspendierten oder emulgierten Wirkstoffen behandelt. Die Aufwandmenge für die Nachauflaufbehandlung betrug 1 und 2 kg/ha aktive Substanz (a.S.).

Die Pflanzen wurden artenspezifisch bei Temperaturen von 10-25 °C bzw. 20-35 °C gehalten. Die Versuchsperiode erstreckte sich über 2 bis 4 Wochen. Während dieser Zeit wurden die Pflanzen gepflegt und ihre Reaktion auf die einzelnen Behandlungen wurde ausgewertet.

Bewertet wurde nach einer Skala von 0 bis 100. Dabei bedeutet 100 kein Aufgang der Pflanzen bzw. völlige Zerstörung zumindest der oberirdischen Teile und 0 keine Schädigung oder normaler Wachstumsverlauf.

Die in den Gewächshausversuchen im Fall der Beispielverbindung 4.003 verwendeten Pflanzen setzten sich aus folgenden Arten zusammen:

20	Lateinischer Name	Deutscher Name	Englischer Name
	Chenopodium album	Weißer Gänsefuß	lambsquarters
			(goosefoot)
	Stellaria media	Vogelsternmiere	chickweed
25	Veronica Spp.	Ehrenpreisarten	speedwell

Mit 1,0 kg/ha a.S. im Nachauflaufverfahren eingesetzt, lassen sich mit der Beispielsverbindung Nr. 4.003 breitblättrige unerwünschte Pflanzen sehr gut bekämpfen.

Die in den Gewächshausversuchen im Fall der Beispielverbindung 1.001 verwendeten Pflanzen setzten sich aus folgenden Arten zusammen:

Lateinischer Name	Deutscher Name
Chenopodium album	Weißer Gänsefuß
Chysanthemum coronarium	Kronenwucherblume
Setaria italica	Kolbenhirse
Solanum nigrum	Schwarzer Nachtschatten

Mit 2,0 kg/ha a.S. im Nachauflaufverfahren eingesetzt, lassen sich mit dem Beispiel 1.001 breitblättrige unerwünschte Pflanzen sehr gut bekämpfen.

Patentansprüche

35

40

55

Dicarbonsäureimide der Formeln la, lb und lc

in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

Х

Sauerstoff oder Schwefel;

R¹

Wasserstoff; Halogen; Cyano;

5

 C_1-C_6 -Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C_3-C_6 -Cycloalkyl, C_1-C_4 -Alkoxy, C_1-C_4 -Halogenalkoxy, C_1-C_4 -Alkylsulfonyl, C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

10

C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen;

 C_2 - C_6 -Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C_1 - C_3 -Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Halogenalkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

15

 C_2 - C_6 -Alkinyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C_1 - C_3 -Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Halogenalkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

20

 C_1-C_4 -Alkoxy; C_2-C_6 -Alkenyloxy; C_2-C_6 -Alkinyloxy; C_1-C_4 -Alkylthio; C_1-C_4 -Halogenalkoxy; C_1-C_4 -Halogenalkylthio, C_1-C_4 -Alkylsulfonyl; C_1-C_4 -Halogenalkylsulfonyl;

25

Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

30

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxycarbonyl;

35

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

40

Phenyl oder Phenyl- C_1 - C_4 -alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_6 -Alkoxy, C_1 - C_6 -Alkylthio, C_1 - C_6 -Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

45

R

Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

50

 C_1 - C_6 -Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylthio, Di- C_1 - C_4 -alkylamino, Halogen, C_3 - C_8 -Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Alkylthio oder C_1 - C_4 -Halogenalkylthio;

55

 C_3 - C_8 -Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C_1 - C_6 -Alkyl, C_1 - C_6 -Halogenalkyl, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann,

wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₃-C₅-Alkinyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

10 Di-C₁-C₄-alkylamino;

5

15

20

25

30

35

40

45

ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann:

Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxycarbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C1-C4-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

sowie pflanzenverträgliche Salze der Dicarbonsäureimide I, ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.

 Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel I, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Dicarbonsäuremonoamide II

in an sich bekannter Weise mit wasserentziehenden Mitteln behandelt.

 Verfahren zur Herstellung der Verbindungen la, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid der Formel X

in Gegenwart einer Base mit Halogenmaleinsäureimiden der Formel XI

wobei R1 und R2 die o.g. Bedeutung haben und Hal für Chlor oder Brom steht, umsetzt.

4. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid X gemäß Anspruch 3 in an sich bekannter Weise mit Maleinimiden XIII

zu den Isoxazolinimiden XII umsetzt

5

15

20

25

30

45

und diese dann mit Oxidationsmitteln dehydriert.

Herbizides Mittel, enthaltend neben inerten Zusatzstoffen mindestens ein Dicarbonsäureimid der Formeln la, Ib oder Ic

- in der die Substituenten die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.
- 6. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses, dadurch gekennzeichnet, daß man die unerwünschten Pflanzen und/oder die von unerwünschten Pflanzenwuchs freizuhaltende Fläche mit einer herbizid wirksamen Menge eines Dicarbonsäureimids der Formeln la, Ib oder Ic gemäß Anspruch 5 behandelt.

Patentansprüche für folgenden Vertragsstaat: ES

1. Verfahren zur Herstellung von Dicarbonsäureimiden der Formeln Ia, Ib und Ic,

5

10

15

20

25

30

35

40

45

50

55

in der die Substituenten folgende Bedeutung haben:

Х

Sauerstoff oder Schwefel;

R١

Wasserstoff; Halogen; Cyano;

C1-C6-Alkyl, welches ein bis fünf Halogenatome und/oder einen oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₃-C₆-Cycloalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl, C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl oder Cyano;

C₃-C₈-Cycloalkyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₄-Alkyl oder Halogen;

C2-C6-Alkenyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, C1-C3-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C1-C4-Alkyl. C1-C4-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C2-C6-Alkinyl, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen oder C1-C3-Alkoxy und/oder ein Phenyl, das seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C1-C4-Alkyl, C1- $C_4-HalogenalkyI, \quad C_1-C_4-Alkoxy, \quad C_1-C_4-Halogenalkoxy, \quad C_1-C_4-AlkyIthio, \quad C_1-C_4-HalogenalkyIthio, \quad HalogenalkyIthio, \quad C_1-C_4-Alkoxy, \quad C_1-C_4-Alkoxy, \quad C_1-C_4-AlkyIthio, \quad C_1-C_4$ gen, Cyano oder Nitro;

C1-C4-Alkoxy; C2-C6-Alkenyloxy; C2-C6-Alkinyloxy; C1-C4-Alkylthio; C1-C4-Halogenalkoxy; C1-C4 enalkylthio, C₁-C₄-Alkylsulfonyl; C₁-C₄-Halogenalkylsulfonyl;

Phenoxy oder Phenylthio, welches ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: C1-C4-Alkyl, C1-C4-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

ein 5- bis 6-gliedriger gesättigter oder aromatischer heterocyclischer Rest, enthaltend ein oder zwei Heteroatome, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel und Stickstoff, wobei der Ring ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: C₁-C₃-Alkyl, Halogen, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Alkoxycarbonyl;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Benzothiophen-3-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-6-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein oder zwei der folgenden Reste tragen kann: Alkyl wie oben genannt, insbesondere Methyl; Halogen wie oben genannt, insbesondere Fluor und Chlor; Alkoxy wie oben genannt, insbesondere Methoxy und Ethoxy oder Alkoxycarbonyl wie Methoxycarbonyl und Ethoxycarbonyl, insbesondere Methoxycarbonyl;

Phenyl oder Phenyl-C1-C4-alkyl, wobei der Phenylkern jeweils unsubstituiert oder durch ein bis drei der folgenden Gruppen substituiert ist: C1-C6-Alkyl, C1-C6-Halogenalkyl, C1-C6-Alkoxy, C1-C6-Halogena-Ikoxy, C1-C6-Alkylthio, C1-C6-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro und Cyano;

R²

5

15

20

25

30

35

40

45

50

55

Wasserstoff; Hydroxyl; C₁-C₄-Alkoxy;

 C_1 - C_6 -Alkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: Cyano, C_1 - C_4 -Alkoxy- C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkoxy, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylthio, C_1 - C_4 -Alkylthio, Di- C_1 - C_4 -Alkylamino, Halogen, C_3 - C_8 -Cycloalkyl oder Phenyl, wobei der Phenylring seinerseits ein bis drei der folgenden Reste tragen kann: Halogen, Cyano, Nitro, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkyl, C_1 - C_4 -Alkylthio oder C_1 - C_4 -Halogenalkylthio;

το C₃-C₈-Cycloalkyl, das eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, Halogen, Nitro oder Cyano;

C₃-C₆-Alkenyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

C₃-C₆-Alkinyl, das ein- bis dreimal durch Halogen und/oder einmal durch Phenyl substituiert sein kann, wobei der Phenylrest seinerseits eine bis drei der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Cyano oder Nitro;

Di-C₁-C₄-alkylamino;

ein 5- bis 6-gliedriger heterocyclischer gesättigter oder aromatischer Rest mit einem oder zwei Heteroatomen, ausgewählt aus der Gruppe Sauerstoff, Schwefel oder Stickstoff, der ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

ein kondensierter aromatischer Rest, ausgewählt aus der Gruppe Benzofuran-2-yl, Benzofuran-3-yl, Isobenzofuran-2-yl, Benzothiophen-2-yl, Isobenzothiophen-2-yl, Indol-2-yl, Indol-3-yl, 1,2-Benzisoxal-3-yl, Benzoxazol-2-yl, 1,2-Benzisothiazol-3-yl, Benzothiazol-2-yl, Indazol-3-yl, (1H)-Benzimidazhol-2-yl, Chinolin-3-yl, Chinolin-5-yl, Chinolin-8-yl, Isochinolin-1-yl und Isochinolin-5-yl, wobei dieser Rest ein- bis dreimal durch C₁-C₄-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

Phenyl, das eine bis vier der folgenden Gruppen tragen kann: C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Halogenalkyl, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, C₁-C₄-Halogenalkylthio, Halogen, Nitro, Cyano, Formyl, Phenyl, C₁-C₄-Alkanoyl, C₁-C₄-Halogenalkanoyl oder C₁-C₄-Alkoxycarbonyl;

Naphthyl, das ein- bis dreimal durch C1-C4-Alkyl oder Halogen substituiert sein kann;

ausgenommen 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet, dadurch gekennzeichnet, daß man die entsprechenden Dicarbonsäuremonoamide II

NX I NHR 2

in an sich bekannter Weise mit wasserentziehenden Mitteln behandelt.

 Verfahren zur Herstellung der Verbindungen la, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid der Formel X

in Gegenwart einer Base mit Halogenmaleinsäureimiden der Formel XI

- wobei R¹ und R² die o.g. Bedeutung haben und Hal für Chlor oder Brom steht, umsetzt.
 - 3. Verfahren zur Herstellung der Verbindungen Ia, dadurch gekennzeichnet, daß man ein Hydroxamsäurechlorid X gemäß Anspruch 3 in an sich bekannter Weise mit Maleinimiden XIII zu den Isoxazolinimiden XII umsetzt

und diese dann mit Oxidationsmitteln dehydriert.

4. Herbizides Mittel, enthaltend neben inerten Zusatzstoffen mindestens ein Dicarbonsäureimid der Formeln la, Ib oder Ic

- in der die Substituenten die in Anspruch 1 angegebene Bedeutung haben, einschließlich 3-Methylisoxazol-4,5-dicarboximid und Thiazol-4,5-dicarbonsäureimide, in denen R² für Phenyl steht, wenn R¹ Methyl oder 2-Thiazolyl bedeutet.
 - 5. Verfahren zur Bekämpfung unerwünschten Pflanzenwuchses, dadurch gekennzeichnet, daß man die unerwünschten Pflanzen und/oder die von unerwünschten Pflanzenwuchs freizuhaltende Fläche mit einer herbizid wirksamen Menge eines Dicarbonsäureimids der Formeln la, Ib oder Ic gemäß Anspruch 4 behandelt.

50

5

10

20

25



EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

Nummer der Anmeldung

EP 91 10 9440

		IGE DOKUMENTE		A-1666	MI ARRIEWATION BET
egorie		nts mit Angabe, sowelt erforderlich geblichen Telle		etrifft spruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. CI.5)
Α	EP-A-0 152 759 (BASF)		1		C 07 D 498/04
•	* Anspruch 1; Beispiele 3,6	*			C 07 D 513/04
	-				A 01 N 43/76
Α	EP-A-0 337 263 (BASF)		1,5		A 01 N 43/78
•	* Ansprüche 1,6 *				A 01 N 43/80 //
					(C 07 D 498/04
					C 07 D 261:00
					C 07 D 207:00)
					(C 07 D 498/04
					C 07 D 263:00
					C 07 D 207:00)
					(C 07 D 513/04
					C 07 D 275:00
	l				C 07 D 207:00)
					(C 07 D 513/04
					C 07 D 277:00
					C 07 D 207:00)
					RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. CI.5)
					C 07 D 498/00
					C 07 D 513/00
					A 01 N 43/00
	1.				C 07 D 261/00
			l		C 07 D 275/00
					C 07 D 263/00
		•			
		•			
D	er vorliegende Recherchenbericht wu				
	Recherchenort	Abschlußdatum der Rech			Prüfer SEUFERT G.H.
	Den Haag	30 September 9		entdoku	nent, das jedoch erst am oder
	KATEGORIE DER GENANNTEN von besonderer Bedeutung allein b von besonderer Bedeutung in Verbi anderen Veröffentlichung derselbe	etrachtet Indung mit einer	nach dem A	Anmelded eldung ar	ilettin veröffentlicht worden ist ngeführtes Dokument in angeführtes Dokument
	technologischer Hintergrund nichtschriftliche Offenbarung				n Patentfamilie,